

修士論文

KamLAND-Zenのための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

成田 和弥

平成 22 年度

概要

現在、KamLAND 実験では、次期計画として ^{136}Xe による $0\nu\beta\beta$ 崩壊の観測 (KamLAND-Zen 実験) を目指している。

この現象が観測されれば、ニュートリノの質量の絶対値、ニュートリノがマヨナラであるかを決定できる。

本実験の実行に際し、現存するバルーン内に Xe を溶解させた液体シンチレーターを留めるため新しく mini-balloon をインストールすることが必要となった。mini-balloon に用いられるフィルムには Xe バリヤー性や光透過率、クリーン度などさまざまな条件が要求される。

本論文では mini-balloon に用いるフィルムを選定するために行った実験、その溶着膜について選定するために行った実験、mini-balloon の構造に関する考察について述べる。本研究により膜の選定、その溶着法の確立、mini-balloon の構造の決定が進み、mini-balloon の製作がほぼ可能となった。

目次

第 1 章 序論	6
1.1 ニュートリノ	6
1.2 二重ベータ崩壊	7
1.3 2 ν モードと0 ν モードについて	7
1.4 0 ν モード観測の物理的意義	9
第 2 章 KamLAND 実験	11
2.1 KamLAND 検出器の構造	11
2.2 検出原理	13
2.3 現行の KamLAND のバルーンについて	14
2.4 KamLAND-Zen に向けての装置などの改造について	15
第 3 章 膜の選定	17
3.1 膜に求められる条件	17
3.2 単膜の選定	19
3.2.1 Xe バリヤー性測定	20
3.2.2 光透過率測定	25
3.2.3 破断強度測定	31
3.2.4 クリーン度	32
3.2.5 経年変化 耐液性	33
3.3 単膜の選定のまとめ	43
3.4 溶着方法の決定	44
3.5 溶着膜の選定	45
3.5.1 Xe バリヤー性測定	45
3.5.2 破断強度測定	47
3.5.3 経年変化 耐液性	47
3.6 溶着膜の選定のまとめ	48
第 4 章 mini-balloon の構造の決定	49
4.1 直径	49
4.2 ゴアの数	50
4.3 ガイドロープ	51
4.3.1 求められる条件	51

4.3.2	クリーン度の測定	51
4.3.3	破断強度測定	52
4.3.4	ガイドロープの配置	55
4.3.5	ガイドロープの加工	56
4.4	溶着膜 T 字部	57
4.4.1	Xe バリヤー性の測定	57
4.4.2	T 字部の破断強度測定	58
第 5 章	まとめ	60
5.1	単膜	60
5.2	溶着膜	60
5.3	総合	60
付 録 A	テストバルーン	61
A.1	1/4 スケールバルーンテスト (EVOH 15 μ m)	61
A.2	1/4 スケールバルーン水中テスト (ポリエチレン 80 μ m)	62
A.3	1/1 スケールバルーンテスト (ポリエチレン 80 μ m)	63
A.4	1/1 スケールバルーン水中テスト (ポリエチレン 80 μ m)	64
A.5	1/1 スケールバルーン水中テスト (ナイロン 25 μ m)	64

目 次

1.1	^{136}Xe の二重ベータ崩壊のエネルギー準位	7
1.2	二重ベータ崩壊のエネルギースペクトル	8
1.3	2ν 崩壊モードと 0ν 崩壊モードのファインマンダイアグラム	9
1.4	ニュートリノの質量構造と期待される感度	10
2.1	KamLAND エリアの全体図	11
2.2	KamLAND 検出器	12
2.3	電子型反ニュートリノの反応	13
2.4	現行のインストール済みのバルーンフィルムの光透過率	15
2.5	mini-balloon を投入した概要図	16
3.1	Q 値付近のバックグラウンド	18
3.2	BOREXINO の検出器	19
3.3	膜透過試験容器 (初期型) 写真	21
3.4	膜透過試験容器 (初期型) 設計図	21
3.5	ガスクロマトグラフィー: GC-4000 (GLサイエンス)	22
3.6	GC-4000 の校正曲線	22
3.7	膜透過試験容器 (最新型)	24
3.8	分光光度計: U-3900 (日立ハイテク)	25
3.9	分光光度計 (U-3900) の原理	26
3.10	ナイロンの光透過率	26
3.11	EVOH(XL) の光透過率	27
3.12	EVOH(E) の光透過率	27
3.13	EVOH(HS) の光透過率	28
3.14	HEPTAX(HPX) の光透過率	28
3.15	HEPTAX(BH) の光透過率	29
3.16	HEPTAX(HF1) の光透過率	29
3.17	HEPTAX(HF2) の光透過率	30
3.18	HEPTAX 型フィルム (Nylon/EVOh/Nylon $15\mu\text{m}$) の光透過率	30
3.19	引張試験機: ZP-200N (IMADA)	31
3.20	恒温槽	34
3.21	ナイロンの光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)	35
3.22	EVOH(XL) の光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)	35

3.23	EVOH(E) の光透過率の変化 (恒温槽 8 日間保持)	36
3.24	HEPTAX(HPX) の光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)	36
3.25	HEPTAX(HF1) の光透過率の変化 (恒温槽 8 日間保持)	37
3.26	HEPTAX(HF2) の光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)	37
3.27	HEPTAX 型フィルム (Nylon/EVOH/Nylon 15 μ m) の光透過率の変化 (恒温槽 20 日間保持)	38
3.28	液体シンチレータのみでの光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)	40
3.29	膜を入れなかった液体シンチレータと Nylon と EVOH-XL が浸った液体シンチレータの光透過率	40
3.30	膜を入れなかった液体シンチレータと EVOH-E と EVOH-HS が浸った液体シンチレータの光透過率	41
3.31	膜を入れなかった液体シンチレータと HEPTAX-BH と HEPTAX-HPX が浸った液体シンチレータの光透過率	41
3.32	膜を入れなかった液体シンチレータと HEPTAX-HF1 と HEPTAX-HF2 が浸った液体シンチレータの光透過率	42
3.33	HEPTAX-HF1 と HEPTAX-BH と EVOH-HS が浸った液体シンチレータの光透過率	42
3.34	HEPTAX-HF2 と Nylon と EVOH-XL が浸った液体シンチレータの光透過率	43
3.35	膜透過試験容器 (初期改良型)	45
3.36	膜透過試験容器 (初期改良型)	46
4.1	mini-balloon を投入した概要図	49
4.2	溶着部 (Ny 同士の溶着部)	50
4.3	ゴアの図	51
4.4	単膜の両端を折って、端を溶着	53
4.5	2 枚の膜を中心で溶着	53
4.6	2 枚の膜を片端で溶着	53
4.7	輪っか部の測定方法	54
4.8	ゴアとガイドロープの関係	55
4.9	ガイドロープの端	56
4.10	ガイドロープの交差部	57
4.11	試験サンプルの層構造	57
4.12	T 字部の試験サンプルのカット寸法	59
A.1	1/4 スケールバルーン (EVOH)	61
A.2	1/4 スケールバルーン (ポリエチレン)	62
A.3	バルーンのたたみ方	63
A.4	1/1 スケールバルーン (ポリエチレン)	63
A.5	1/1 スケールバルーン (ポリエチレン) at ATOX	64
A.6	1/1 スケールバルーン (ナイロン) at ATOX	65

表 目 次

1.1	レプトンの種類	6
2.1	バルーンとケブラー紐の放射性不純物含有量	14
3.1	単膜に含まれる放射性不純物含有量の目標値	18
3.2	単膜の試験サンプルの種類	20
3.3	5年間で予想される Xe の漏れ (初期透過試験容器使用) 45°C で保有 (※透過試験容器に問題があったため信頼がない)	23
3.4	5年間で予想される Xe の漏れ (最新の Xe 透過試験容器使用) 45°C で保有	23
3.5	単膜の破断強度	32
3.6	単膜およびペレットの放射性不純物含有量	33
3.7	単膜の破断強度変化 45°C で保持	39
3.8	単膜の試験のまとめ	44
3.9	5年間で予想される Xe の漏れ 45°C で保有	46
3.10	溶着サンプルの破断強度 45°C で保持	47
3.11	溶着膜試験サンプルの破断強度変化	48
4.1	紐の候補の放射性不純物含有量	52
4.2	紐の破断強度 ($N/3cm$)	53
4.3	T 字部における 5年間で予想される Xe の漏れ	58
4.4	T 字部の破断強度	59

第1章 序論

ニュートリノはその存在を1930年にパウリにより予言され、1956年にライネスとコーワンによって、初めて原子炉からの電子型反ニュートリノの検出に成功した。その後、現在までKamLANDを含め、世界中にてニュートリノの研究が行われてきた。そうした中で、ニュートリノ物理学における研究で現在一番注目を集めているテーマの一つが、KamLAND-Zenも目標としている $0\nu\beta\beta$ 崩壊の探索である。本研究では、KamLAND-Zenに用いるmini-balloonのフィルム膜や、その溶着方法を選定、決定するための実験を行った。本論文では、以下の構成でまとめた。

第1章では、ニュートリノと β 崩壊について。

第2章では、現在のKamLAND実験施設について。

第3章では、膜の選定のために様々な実験について。

第4章では、mini-balloonの構造を決定したプロセスについて。

第5章では、溶着膜T字部について。

第6章では、mini-balloonの長期安定性を検証するためのミニスケール実験(minimini-balloon実験)について。

第7章では、本研究のまとめを行い、今後の課題や展望について。

1.1 ニュートリノ

ニュートリノとはスピン $1/2$ 、電荷 0 のレプトンである。その存在は、 β 崩壊時の運動エネルギースペクトルが連続であることと角運動量の保存を説明するために、1930年にパウリによって予言された。長い間、標準理論によってニュートリノは質量持たないとされてきた。けれども、スーパーカミオカンデや、KamLANDなどにおいて、ニュートリノ振動が観測され、ニュートリノは質量を持つことがわかった。ただし、その絶対質量は現在まで決定されておらず、またその質量が他の素粒子に比べて非常に小さいことも説明できていない。KamLAND-Zen実験はそれらの謎の解明に向けた実験である。

	スピン	電荷	第1世代	第2世代	第3世代
レプトン	$\frac{1}{2}$	0	ν_e	ν_μ	ν_τ
	$\frac{1}{2}$	-1	e	μ	τ

表 1.1: レプトンの種類

1.2 二重ベータ崩壊

二重ベータ崩壊とは、原子核が同時に2つのベータ線(電子)を放出して原子番号が2つ大きい原子核に移る現象である。また、そのモードには2つのニュートリノが放出される2 ν モードと、ニュートリノが放出されない0 ν モードの2つのモードがある。また、0 ν モードはレプトン数が保存されておらず、このモードはニュートリノがマヨラナ粒子でなければ起こらない。マヨラナ粒子とは粒子とその反粒子との区別がないフェルミオンのことである。

下に本実験でも用いる ^{136}Xe の二重ベータ崩壊のエネルギー準位の図を記す。

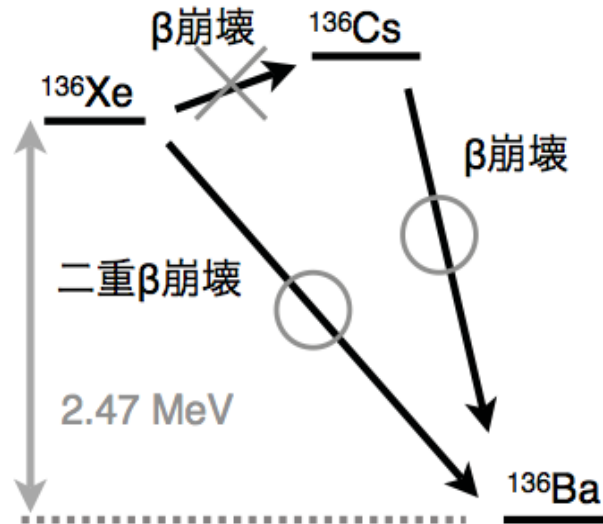
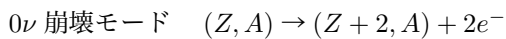
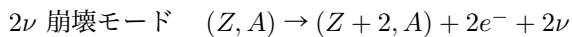


図 1.1: ^{136}Xe の二重ベータ崩壊のエネルギー準位

1.3 2 ν モードと0 ν モードについて

両モードともに電子を2つ放出し、原子番号が2つ大きい原子核になる反応である。ただし、下の式のように2 ν モードは反応時に電子とともに2つのニュートリノを放出するが、0 ν モードは反応時にニュートリノを放出しない。



また、2 ν と0 ν モードの違いの一つにQ値のスペクトルの形状がある。2 ν モードでの崩壊時には放出されたニュートリノが運動エネルギーを持つためQ値スペクトルは連続となる。一方、0 ν モードは崩壊時にニュートリノが放出されないためQ値でピークを作る。

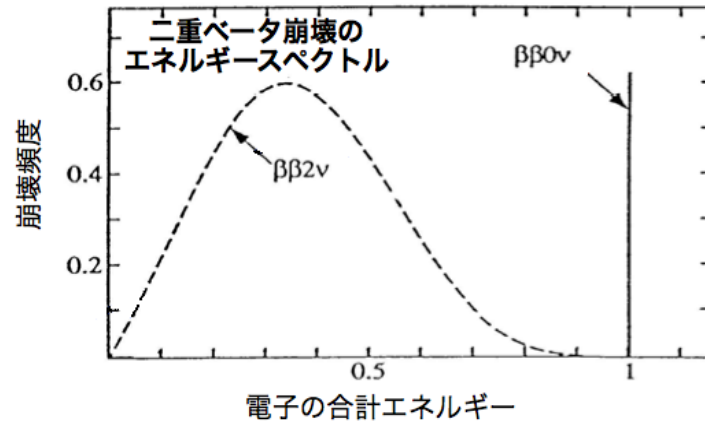


図 1.2: 二重ベータ崩壊のエネルギースペクトル

2ν モード

2ν モードの半減期 $T_{1/2}^{2\nu}$ は次式で表される。

$$[T_{1/2}^{2\nu}]^{-1} = G^{2\nu} |M^{2\nu}|^2 \quad (1.1)$$

ここで $G^{2\nu}$ は位相空間の体積、 $M^{2\nu}$ は核行列要素である。この崩壊は弱い相互作用の二次の摂動によって起こるため、半減期は非常に長く、崩壊核種によって異なるがおよそ $10^{19} \sim 25$ 年のオーダーである。この崩壊を起こす原子核は既に 60 種類以上知られているが、半減期が判明しているのはそのうち 10 種類程度である。

0ν モード

0ν モードの崩壊も、弱い相互作用によって起こる。0ν モードの半減期 $T_{1/2}^{0\nu}$ は次式で表される。

$$[T_{1/2}^{0\nu}]^{-1} = G^{0\nu} \langle m_\nu \rangle^2 |M^{0\nu}|^2 \quad (1.2)$$

このモードの反応は、レプトン数が保存されていない。また、 $\langle m_\nu \rangle$ はニュートリノの有効質量を表している。したがって、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊反応が観測されたならばこの式からニュートリノの質量が求められる。 0ν モードの半減期が判明している原子核はまだ無い。

また、 0ν モードはニュートリノを媒介して反応を起こすため、 2ν モードに比べてずっとその半減期が非常に長い。

例： ^{76}Ge

$$T_{1/2}(0\nu) = 0.86 \times 10^{27} \text{years} \quad (50 \text{mev})$$

$$T_{1/2}(2\nu) = (1.5 \pm 0.1) \times 10^{21} \text{years} \quad (\text{実験値})$$

両方のモードのファインマンダイアグラムを図 1.3 に示す。

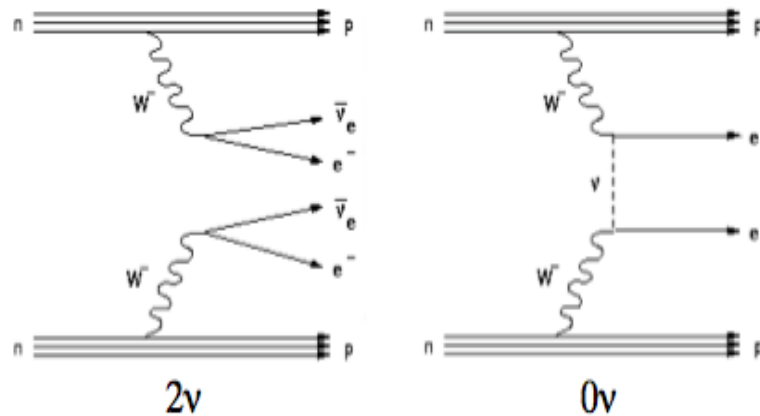


図 1.3: 2ν 崩壊モードと 0ν 崩壊モードのファインマンダイアグラム

1.4 0ν モード観測の物理的意義

前の節でも述べたが、改めて KamLAND-Zen 実験が観測を目指す 0ν モード発見の物理的意義についてここでまとめる。

$0\nu\beta\beta$ が起きるためには、レプトン数の非保存と、ニュートリノが右巻きと左巻きの区別がないことが求められる。この2つの条件は、ともに標準理論では禁止されている。したがって、 0ν モードが観測されれば、標準理論の破れが証明され、同時にニュートリノがマヨラナ粒子であることが分か

る。また、繰り返しになるが式 (1.2) より 0ν の半減期からニュートリノの絶対質量を求めることができる。

また、もし万が一 KamLAND-Zen 実験にて、 0ν モードが観測されなかったとしても、期待されている感度からニュートリノの質量構造が標準階層構造と結論づけることができる。また、レプトン数の非保存によりレプトジェネシス (付録)、ニュートリノがマヨナラ粒子であることの発見によりシーソー機構 (付録) の解明への足がかりとなる。したがって、KamLAND-Zen 実験が目指す $0\nu\beta\beta$ 崩壊反応の観測は、ニュートリノの性質を明らかにするだけでなく、宇宙構造の謎の解明にもつながる非常に重要な実験である。

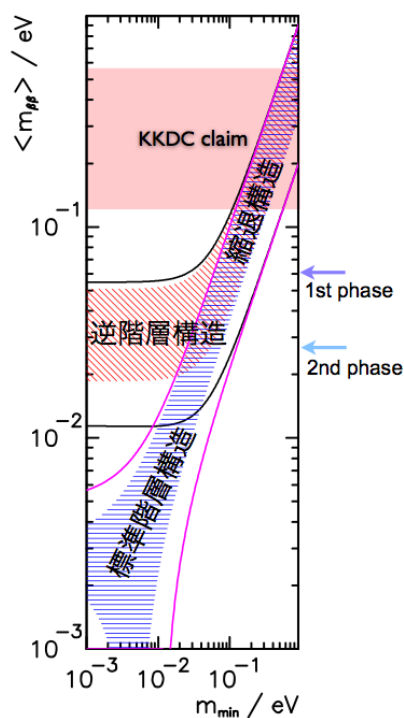


図 1.4: ニュートリノの質量構造と期待される感度

第2章 KamLAND 実験

KamLAND (Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector の略称) は極低放射能環境下で、液体シンチレータを用いて反ニュートリノを観測し、ニュートリノ物理学を研究している検出装置である。本章では、その KamLAND の構造や反応の検出原理について述べる。

2.1 KamLAND 検出器の構造

KamLAND 検出器のエリア全体図を下に示す。

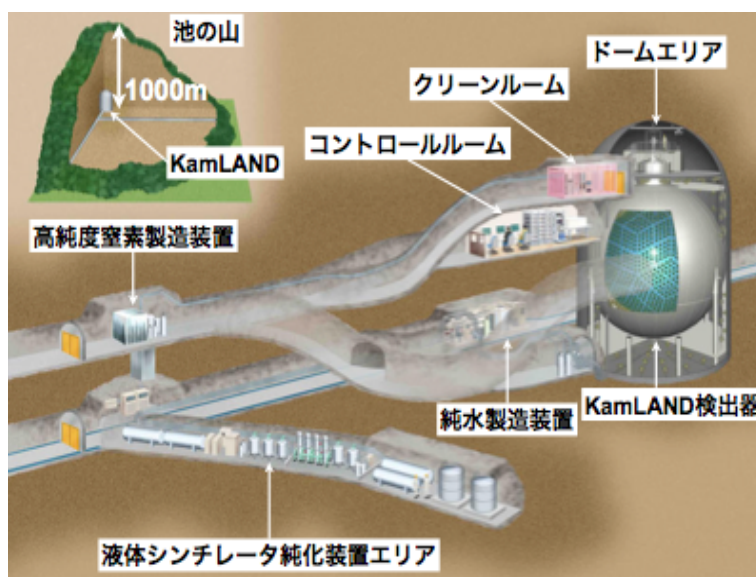


図 2.1: KamLAND エリアの全体図

KamLAND は、以前は Kamiokande 検出器が設置されていた岐阜県飛騨市神岡町の池の山の山頂より地下約 1,000m の神岡鉱山内に建設されている。地下深くに設置したことにより、バックグラウンドを減少させることが出来ている。(降り注ぐ宇宙線 μ 粒子のフラックスは地上の約 10 万分の 1、 $1.5 \times 10^{-7} \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$)

KamLAND 検出器の主要部は、1000 トンの液体シンチレータとそれを取り囲む 1879 本の光電子増倍管で構成されている。
 検出器の中心部には直径 18m、体積 3000m³ の球形ステンレスタンクとそれを覆っている円筒形タンクより構成されており、直径 13m の中心のバルーン内にニュートリノ標的である液体シンチレータが満たされている。

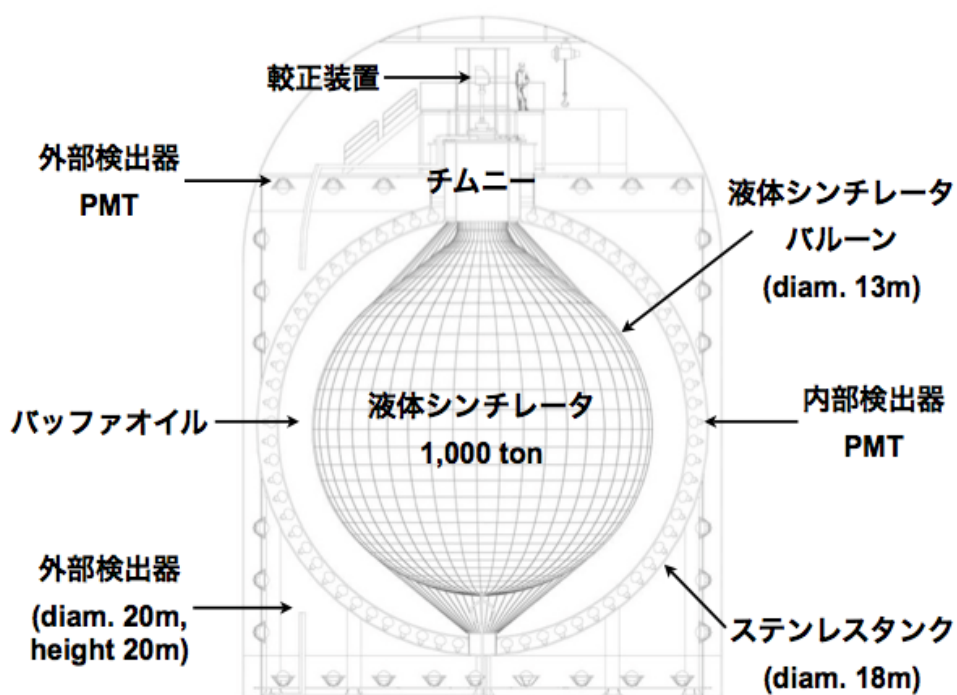


図 2.2: KamLAND 検出器

現在、使用している液体シンチレーターの組成比は以下のようになっている。

ノルマルパラフィン (ドデカン、 $C_{12}H_{26}$) 80.2%(0.7526 g/cm³ @15°C)

ブソイドクメン (1,2,4 トリメチルベンゼン、 C_9H_{12}) 19.8% (0.8796 g/cm³ @15°C)

PPO (2,5 ジフェニルオキサゾール、 $C_{15}H_{11}NO$) 1.36 g/l

2.2 検出原理

カムランドは逆 β 崩壊反応を用いて、原子炉反ニュートリノを検出している。逆 β 反応は以下の式である。

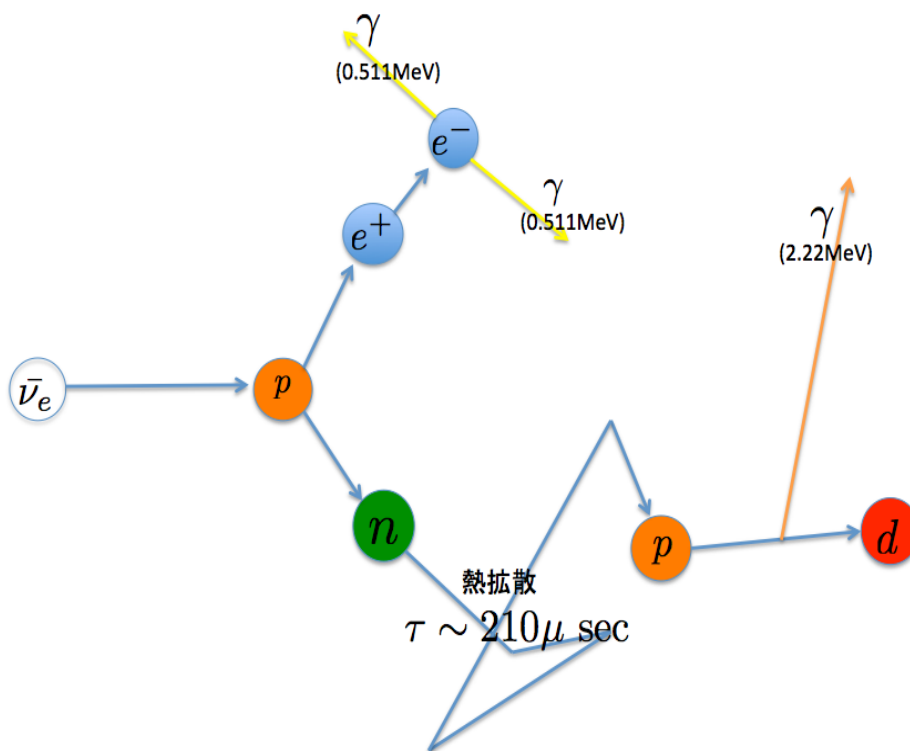


図 2.3: 電子型反ニュートリノの反応

まず入射して来た電子型反ニュートリノは液体シンチレータ中の陽子と反応して逆ベータ崩壊を起こす。この反応によって生成された陽電子は液体シンチレータ中で電子と対消滅を起こす。その時放出される 0.511 MeV の 2 本の消滅 γ 線が先発信号である。

また、中性子は熱中性子となり約 $210 \mu \text{ sec}$ で液体シンチレータ内の陽子に捕獲される。その際に 2.22 MeV の γ 線を放出する。これが後発信号である。

この、二種類の信号の時間差を利用して標的となる反ニュートリノを検出している。この検出方法を遅延同時計測という。

2.3 現行の KamLAND のバルーンについて

現在、KamLAND 実験に用いられているバルーン膜について述べる。

現行のバルーン膜に建設当時に求められた条件を以下に示す。

- 低放射性物質含有量
- 高い光透過率
- 液体シンチレータとバッファオイルに対する適合性
- Rn に対する不浸透性
- 球形を保つ強度

これらの要求を満たす為に、バルーンは EVOH(15 μ m)/nylon(25 μ m)/nylon/nylon/EVOH の 5 層構造になっており、厚さは 135 μ m である。外側の 2 層は Rn や酸素に対して不浸透性の高い EVOH(エチレンビニルアルコール共重合体) で、内側の 3 層は強度・透明度が高い nylon から構成されている。このバルーンに使用されているフィルムは波長 370nm から 500nm の間で 90%以上という高い光透過率であり、液体シンチレータ中で発生したシンチレーション光は容易にバルーンフィルムの外側に伝わる。バルーンにかかる圧力は内側と外側の液の密度差で決まり、0.01%程度 (全体で約 100kgf/cm²) で制御されている。バルーンは縦 44 本、横 30 本のケブラー紐のネットワークで支えられており、縦方向のそれぞれの紐の張力は検出器の上部に取り付けられた 44 本のロードセルで監視されている。バルーンとケブラー紐の放射性不純物量を表 (2.1) に示す。

	^{238}U	^{232}Th	^{40}K
バルーン [ppb]	0.018	0.014	0.27
ケブラー紐 [ppb]	0.08	0.8	1.2

表 2.1: バルーンとケブラー紐の放射性不純物含有量

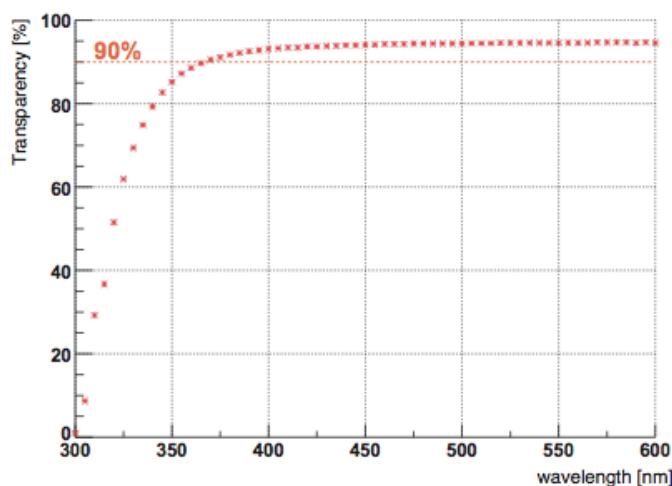


図 2.4: 現行のインストール済みのバルーンフィルムの光透過率

2.4 KamLAND-Zen に向けての装置などの改造について

今回、KamLAND-Zen 実験に向けて一部実験装置の KamLAND の改造が必要となった。一つは Xe を溶解させた液体シンチレータを入れて、装置内に投入する mini-balloon の開発。もう一つは、Xe 溶解用の液体シンチレータの開発である。

mini-balloon の開発が必要な理由は、崩壊反応の確率を高めるためである。現在の KamLAND バルーン (1000 トン) に Xe を溶かすと、Xe の密度が小さくなってしまい、反応が起こる確率が低くなってしまふからである。したがって、用意した Xe(400kg ※第一段階) が溶解度の限度まで溶かすことができる量だけの液体シンチレータを閉じ込められるバルーンが新たに必要になった。

次に Xe 溶解用の液体シンチレータの開発が必要な理由は、従来の液体シンチレータでは Xe を溶かすとその発光量や光透過度が低下してしまう恐れがあるからである。そのため、以下の条件を満たす必要がある。

- 現行の液体シンチレータの 85[%] 以上の発光量を持つこと
- 透過度が 4m 以上あること
- 現行のシンチレータと同程度の密度であること

また、Xe を 1000kg 使う第二段階では、集光効率のアップのために光電子増倍管まわりの改良も必要になってくる。現在の光電子増倍管の光電面が InnerDetector の球面をカバーする面積は 17 インチ光電子増倍管で 22[%]、20 インチ光電子増倍管で 12[%] であり、合計 34[%] である。これを 80[%] まで改善することを目指す。現在、光を反射する素材で出来たコーン状のライトガイドを光電子増倍管の周りに設置して光電面に光を効率よく誘導する手法が考えられており、KamLAND 環境に適したミラー、効率的なライトガイドの形状等が研究されている。また、Xe の使用量が増えることに伴

い mini-balloon のスケールアップも行われる予定である。

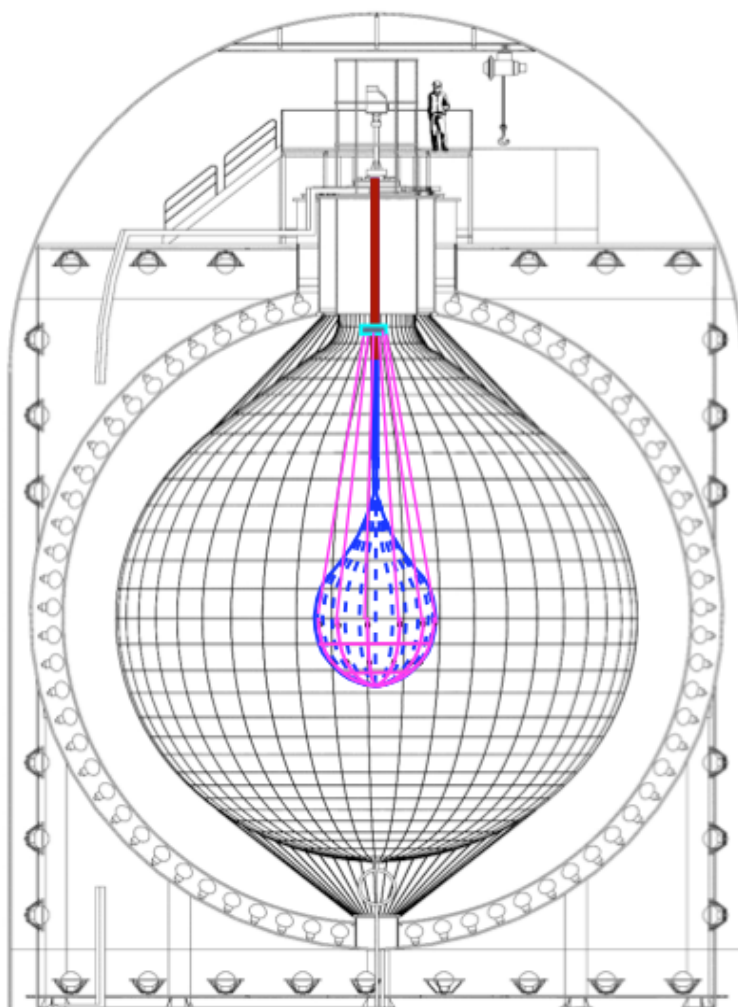


図 2.5: mini-balloon を投入した概要図

第3章 膜の選定

前章までに述べたように、次期実験である KamLAND-Zen では、 ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊反応の観測を目指している。本章では、前述のとおり KamLAND-Zen 実験で新たに必要となったバルーン膜としてナイロンフィルム膜の溶着膜を使用するという選定の過程について述べる。mini-balloon に使用する膜には、現行のバルーン膜とは違う条件を要求されている。この章のはじめに前章に引き続き膜に求められている条件についてさらに細かく述べ、続いて選定するためにそれぞれの条件に対応し行った実験の方法、結果についてまとめる。

3.1 膜に求められる条件

KamLAND-Zen 実験では Xe 溶解 LS を閉じ込め実験装置に投入するため、新バルーン mini-balloon を製作する。KamLAND-Zen 実験の目的である Xe の $0\nu\beta\beta$ の観測には、測定領域にバックグラウンド信号が多くあるため、実験には今まで以上の感度が要求される。したがって、本実験に用いられるバルーン膜にも様々な条件が要求されている。下に今回の膜に要求されている条件を述べる。

Xe バリヤー性

Xe ガスが膜を通過してしまうと、親核種が減少してしまい、反応数が減少して反応の観測が困難になる。また、Xe の回収も困難になる。濃縮 ^{136}Xe は非常に高価であり、Xe の損失は実験の進行に多大な影響を与えることが考えられる。Xe が漏れるとその回収も難しい。実験環境の回復には非常に時間を費やすことになると考えられている。

目標値：4kg (=400kg×1%)/5year の Xe の漏れ

光透過率

反応時に発せられる光を逃さず観測するためには、光透過率が高い膜が求められる。

目標値：光電子増倍管の感度領域 (380~420nm) で約 90%

力学的強度

バルーンの形状を保つために本実験では、バルーンの内側と外側で液体シンチレーターの密度差を 0.02~0.04% に設定する。膜はこの密度差から生じる圧力に耐えうることが求められる。さらに安全係数をかけて密度差 1.0% に耐えられる強度を目標値と設定した。

目標値：10N/cm

クリーン度

本実験での観測したい $0\nu\beta\beta$ の Q 値=2.46MeV 付近にはさまざまなバックグラウンドが存在する (図 3.1)。したがって、膜からのバックグラウンドを少なくするために、可能な限りバックグラウンド源を含まない膜を使用する質用がある。主なバックグラウンド源の目標値を以下に示す。

	目標値 (g/g)
^{238}U	$< 10^{-12}$
^{232}Th	$< 10^{-12}$
^{40}K	$< 10^{-11}$

表 3.1: 単膜に含まれる放射性不純物含有量の目標値

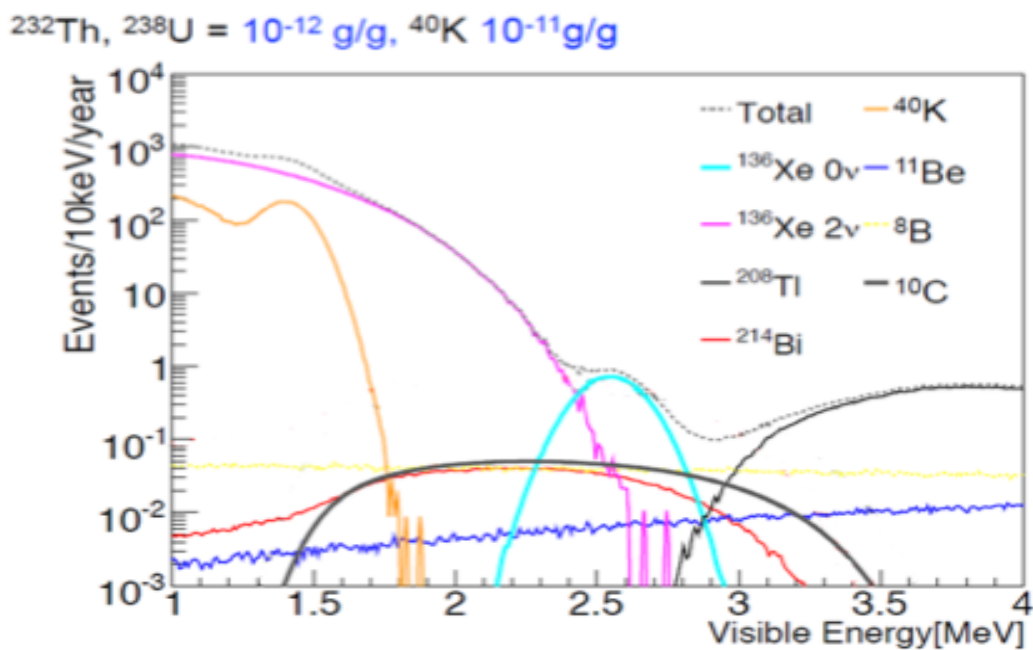


図 3.1: Q 値付近のバックグラウンド

経年変化 耐液性

本実験は、第一段階では2年、第二段階では5年という期間の実験を想定している。したがって、その期間液体シンチレーターと相互に干渉しないことが求められる。経年変化を調べるために、Xe バリヤー性、光透過率の変化、強度の変化そして液体シンチレータの光透過率の変化の面から実験を

行った。

目標は、経年変化させない状態の膜に求められている上記の条件を5年後までクリアすることである。

3.2 単膜の選定

現在の KamLAND において使用されているバルーンは前章で述べた通りビニロン系フィルムを用いている。ちなみに KamLAND グループと同じく低バックグラウンド環境で ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊反応の観測を計画しているイタリアの BOREXINO (図 3.2) グループもビニロン系フィルムを使用している。KamLAND-Zen 実験に用いる mini-balloon についてもビニロン系フィルムを使用する。その理由は、ビニロン系フィルムの性質が優れているだけではなく、KamLAND 建設時に一度バルーンを製作しているという経験を活かす狙いもある。

この節では、mini-balloon の主体となる膜の材質、溶着方法、溶着膜の選定について述べる。

表 (3.2) が今回試験したサンプルの一覧の表である。

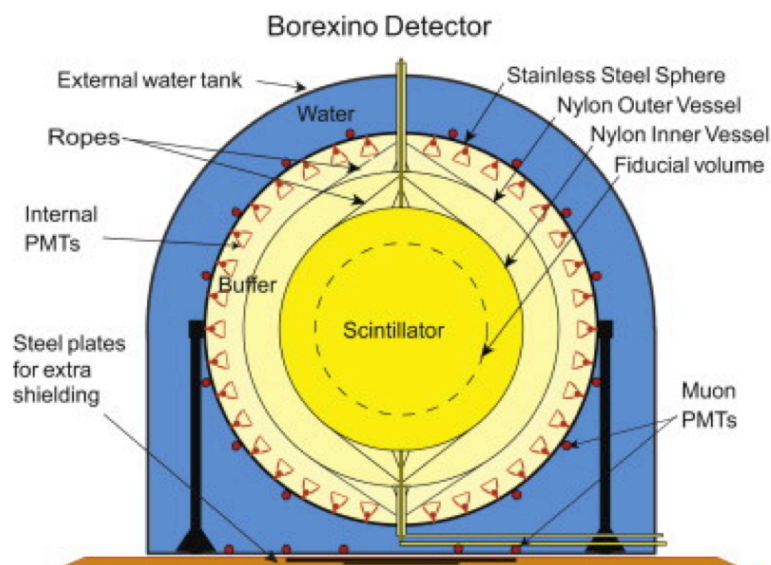


図 3.2: BOREXINO の検出器

種類	タイプ	厚さ (μm)	備考、層構造
ナイロン (ユニチカ) (東洋紡) (東洋紡) (興人)		25	二軸延伸
		25	二軸延伸
		15	二軸延伸
		15	二軸延伸
EVOH(6 クラレ)	XL	12	二軸延伸
	XL	15	二軸延伸
	E	30	無延伸
	HS	30	無延伸
HEPTAX(グンゼ)	HPX	25	Ny/EVOH/Ny
	BH	25	LL/Ny/EVOH/Ny/LL 表面がポリエチレン
	HF	15	Ny/Ny/EVOH/Ny/Ny 片面コロナ処理
	HF2	15	Ny/Ny/EVOH/Ny/Ny 両面コロナ処理
X 社		15	Ny/EVOH/Ny

表 3.2: 単膜の試験サンプルの種類

3.2.1 Xe バリヤー性測定

Xe 透過試験容器とガスクロマトグラフィーを用いて膜の Xe バリヤー性を計測した。

測定方法

今回の測定に用いた試験機の写真とその設計図を図 3.3、3.4 に示す。この試験機に試験膜を挟み、試験機に LS を入れる。その際に、片方だけに Xe を溶解させる。その後、恒温槽 (45°C) に試験機を入れ、十分な期間経過した後に、ガスクロマトグラフィー (図 3.5) にて Xe の溶解量を測定する。今回使用したガスクロマトグラフィーの測定感度は 20ppm である。(図 3.6)

※ガスクロマトグラフィーの検出原理

カラムに試料を入れ、試料を気化させる。カラム内では成分ごとに流れる速度が異なる。そして、検出器に成分が到達すると、成分の熱伝導率の違いによって検出器 (TCD) に流れる電流が変化する。その電流の変化量から検出した成分の量を測定する。

測定結果

結果を表 3.3 に示す。今回の測定では、どの試験膜からも Xe の漏れは検出されなかった。したがって、使用したガスクロマトグラフィーの検出限界 (20ppm) から導かれる 5 年間で予想される Xe の

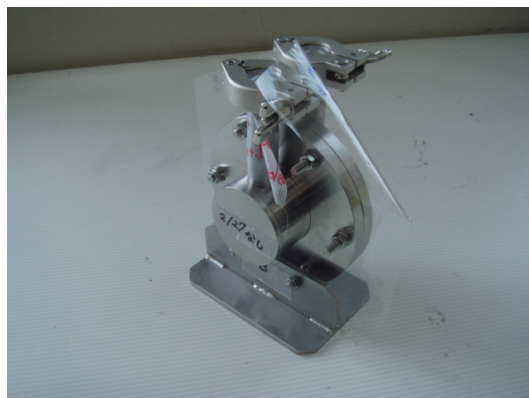


図 3.3: 膜透過試験容器 (初期型) 写真

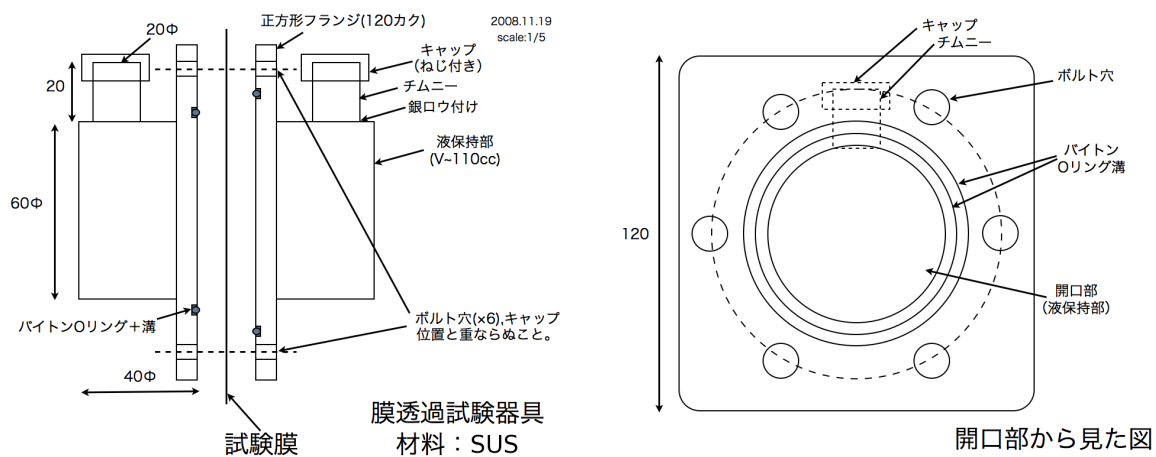


図 3.4: 膜透過試験容器 (初期型) 設計図



図 3.5: ガスクロマトグラフィー：GC-4000 (GL サイエンス)

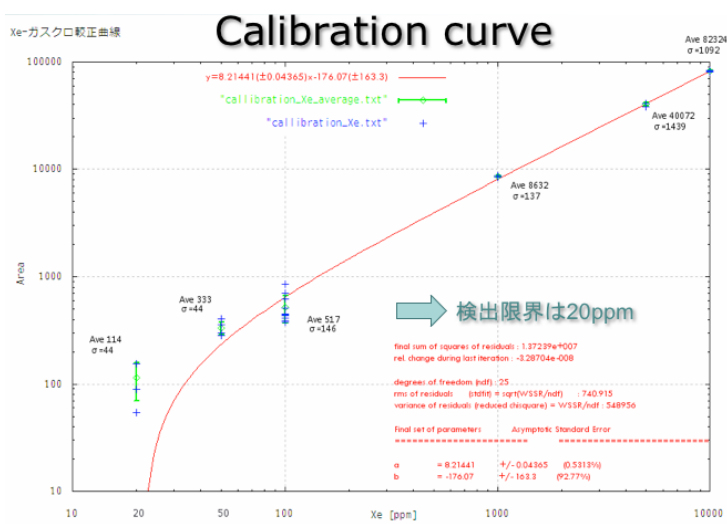


図 3.6: GC-4000 の較正曲線

漏れる上限は表の値になる。ただし初期型の Xe 透過試験容器には Xe のリークがあることが後に分かった。したがって、表 3.3 の値は信頼度がほとんど無い。

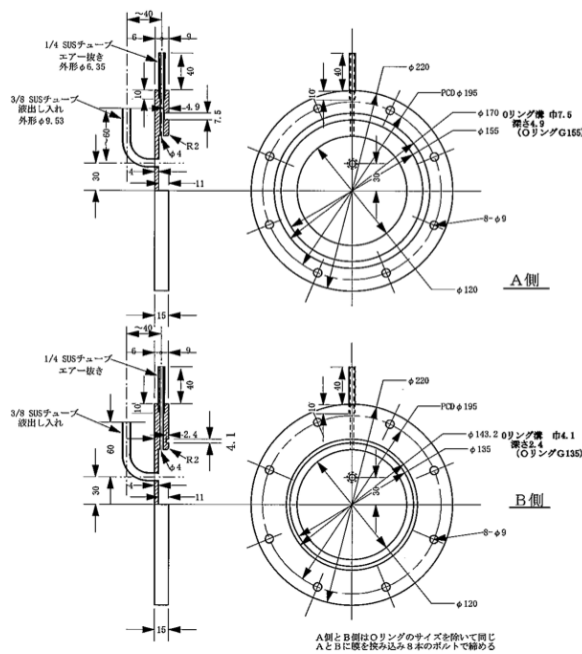
種類	タイプ	保有期間 (日)	厚さ (μm)	5 年間で予想される Xe の漏れ (kg) ※
ナイロン		63	25	< 0.40
EVOH	XL	63	12	< 0.27
	HS	11	30	< 2.2
HEPTAX	HPX	7	25	< 3.7
	HF2	7	15	< 0.91

表 3.3: 5 年間で予想される Xe の漏れ (初期透過試験容器使用) 45°C で保有 (※透過試験容器に問題があったため信頼がない)

ガスバリアー性を強化した最新の Xe 透過試験容器を用いた計測の結果を表 3.4 に示す。最新のデータによると今回試験したナイロンフィルムは目標値である 5 年間で許容される Xe 量 4kg をクリアしているが、誤差を考えると本実験に使用できるかは微妙である。ただし、後に同サンプルを 10°C、15°C で保持したサンプルは目標値のガスバリアー性をクリアしていた。

種類	保有期間 (日)	厚さ (μm)	5 年間で予想される Xe の漏れ (kg)
ナイロン	13	25	3.20 \pm 1.80

表 3.4: 5 年間で予想される Xe の漏れ (最新の Xe 透過試験容器使用) 45°C で保有



(a) 設計断面図



(b) 実物写真

図 3.7: 膜透過試験容器 (最新型)

3.2.2 光透過率測定

$0 \nu \beta \beta$ 崩壊反応が起こると液体シンチレータを励起させ、液体シンチレータが発光する。その光を検出器に届かせるためには、発光量が大きく、光透過率が高い液体シンチレータとともに、光透過率の高いバルーン膜が必要である。そこで、試験サンプルの光透過率を分光光度計を用いて測定した。

測定方法

測定には分光光度計 (U-3900)(図 3.8) を用いた。ダブルビーム方式のため光度計には 1cm、10cm のセルを設置し、両方へ液体シンチレータを入れる。そして、光透過率を測定したい試験膜を 10cm のセルに設置する。その際、膜を透過する光の光路長が著しく変わらないようにするため、試験膜が透過光に対しなるべく直角になるように気をつけて膜を設置した。走査波長領域は 300nm から 650nm まで行った。(KamLAND で用いられている光電子増倍管の感度領域は約 380~400nm)



図 3.8: 分光光度計 : U-3900 (日立ハイテク)

測定結果

測定結果を以下に示す。今回の測定で目標値である 90% の透過率は HEPTAX の HPX 以外全ての試験サンプルがクリアした。ただし、同じく HEPTAX の BH、HF 1 タイプはクリアしたものの 90% ギリギリであった。

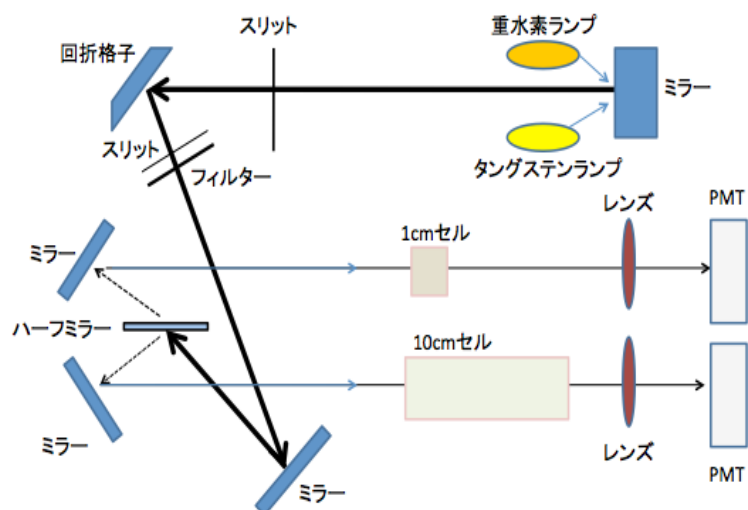


図 3.9: 分光光度計 (U-3900) の原理

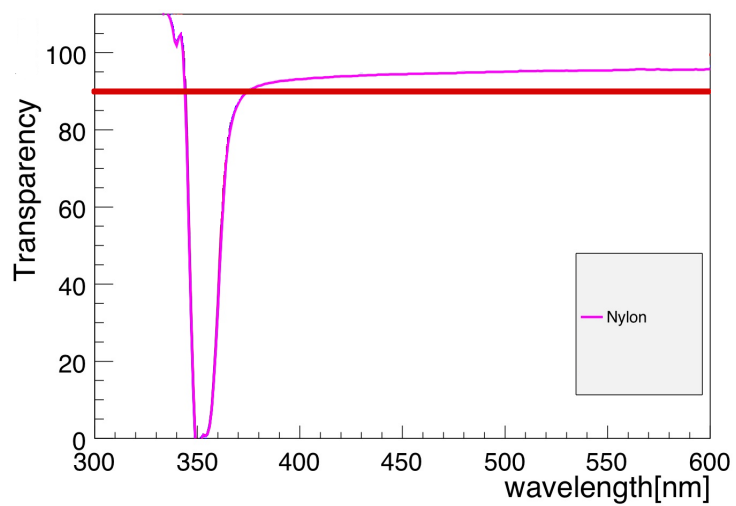


図 3.10: ナイロンの光透過率

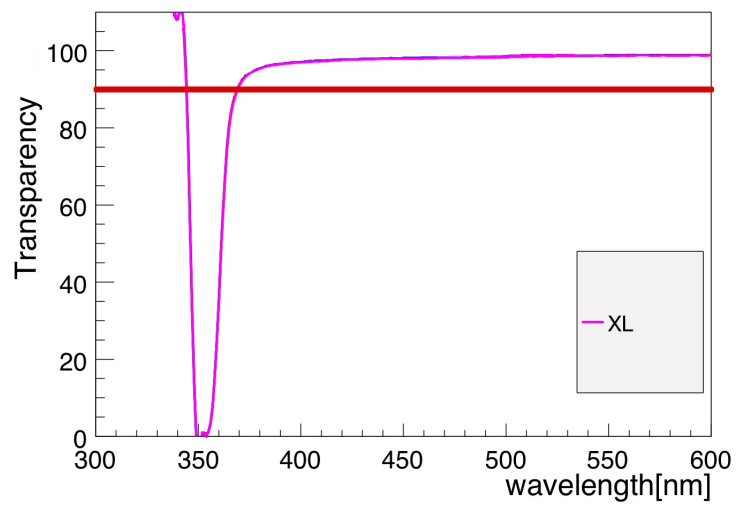


図 3.11: EVOH(XL) の光透過率

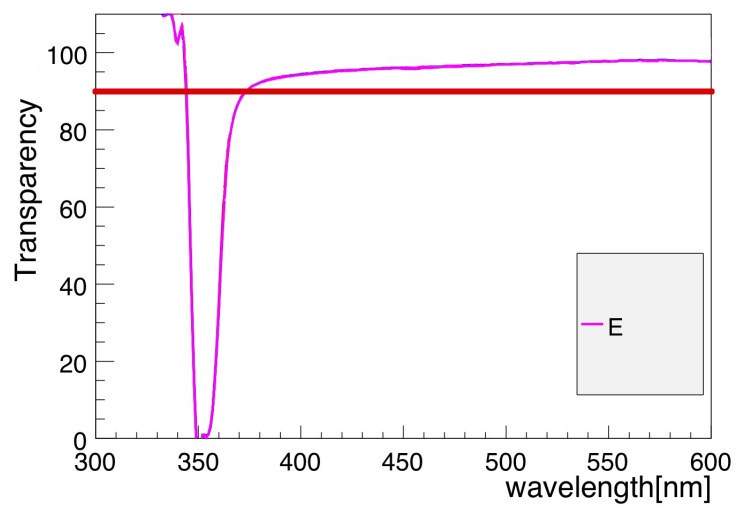


図 3.12: EVOH(E) の光透過率

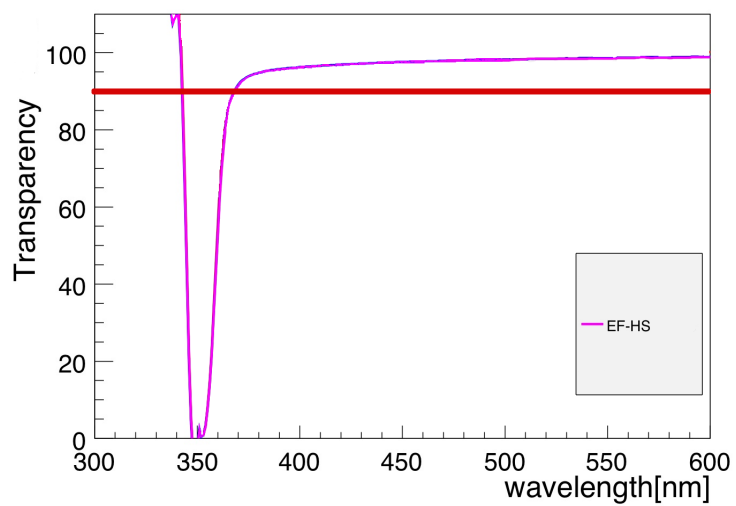


図 3.13: EVOH(HS) の光透過率

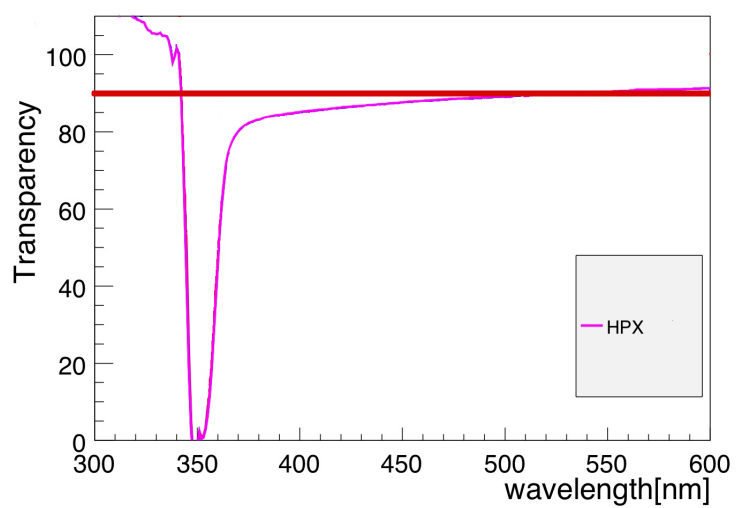


図 3.14: HEPTAX(HPX) の光透過率

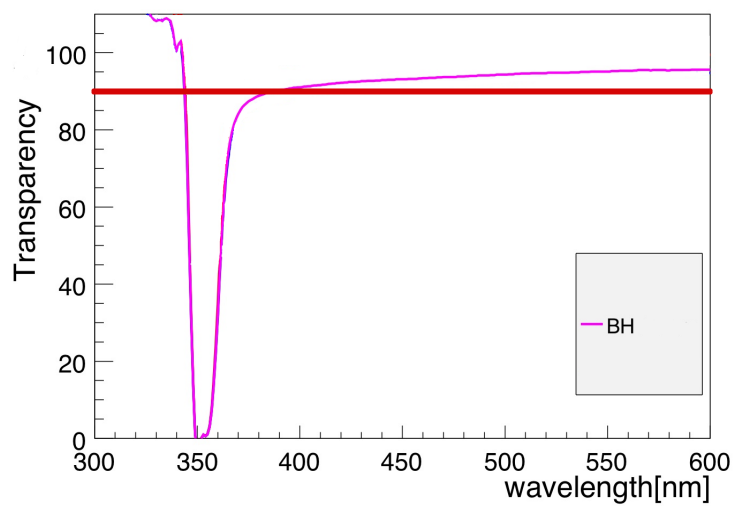


図 3.15: HEPTAX(BH) の光透過率

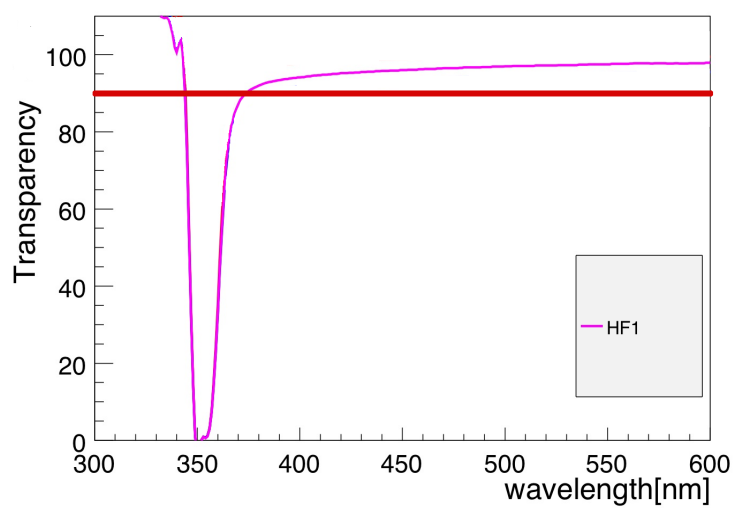


図 3.16: HEPTAX(HF1) の光透過率

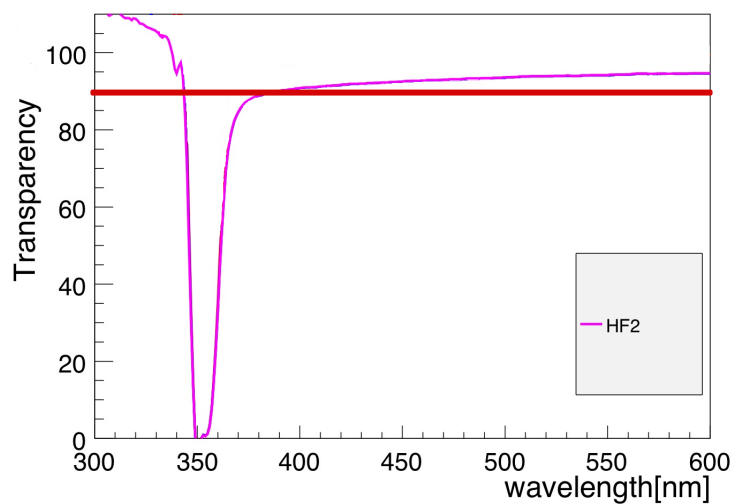


図 3.17: HEPTAX(HF2) の光透過率

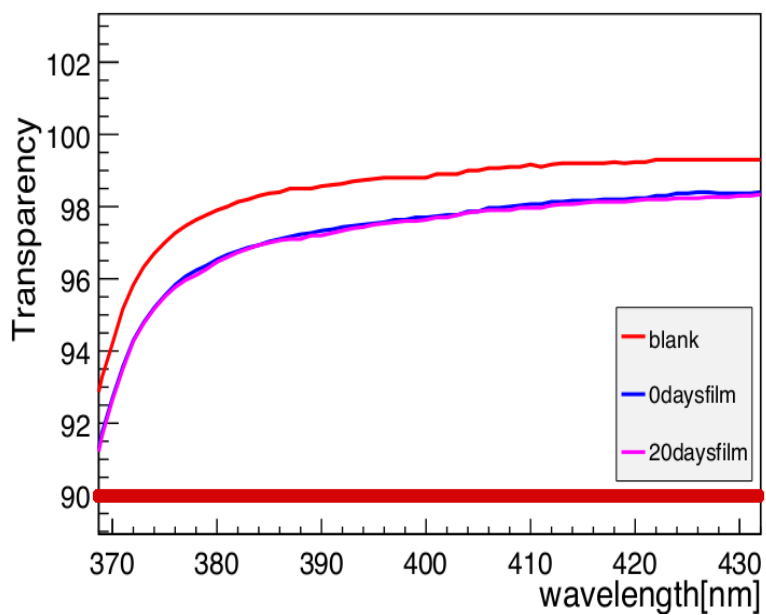


図 3.18: HEPTAX 型フィルム (Nylon/EVOh/Nylon 15 μ m) の光透過率

3.2.3 破断強度測定

安定した実験を実行するには、実験装置の安定が必要である。今回使用するフィルムは数十 μ m と非常に薄い。また、mini-balloon の球状を維持するために膜の内側と外側とで液体の密度差を $\Delta\rho/\rho = 0.02 \sim 0.04\%$ に設定する。したがってバルーンにはその密度差に応じた圧力がかかる。さらに今回の目標値は安全係数を掛けて $\Delta\rho/\rho = 1.0\%$ 時の圧力にあたる $10N/cm$ とした。

実験方法

膜の破断強度を測定した。破断実験に用いた試験機は以下の写真のものである。この試験機に試験サンプルを 2cm 幅 (Ny/EVOH/Ny フィルムは 1cm 幅) にカットしたものを挟み、破断させた。なお、破断強度は試験片の幅によってのみ決まり、その長さには依らない。



図 3.19: 引張試験機：ZP-200N (IMADA)

実験結果

結果を表 3.5 に示す。今回の測定では残念なことに Ny/EVOH/Ny フィルム以外の全ての膜はチャックのエッジ部で破断してしまった。したがって、実際の試験サンプルの強度は表の値よりも高い値であることが予想される。今回の測定では EVOH の XL タイプ以外の試験サンプルはすべて目標値である $10N/cm$ をクリアしていた。

種類	タイプ	厚さ (μm)	(N/cm)
ナイロン (ユニチカ)		25	$\geq 34.3 \pm 4.9$
EVOH(クラレ)	XL	12	$\geq 8.4 \pm 0.7$
	E	30	$\geq 15.5 \pm 0.8$
	HS	30	$\geq 14.4 \pm 1.2$
HEPTAX(グンゼ)	HPX	25	$\geq 28.2 \pm 3.0$
	BH	25	$\geq 11.7 \pm 1.1$
	HF1	15	$\geq 13.6 \pm 1.3$
	HF2	15	$\geq 16.5 \pm 2.3$
X 社	Ny/EVOH/Ny	15	$33.4 \pm 1.4(\text{N/cm})$

表 3.5: 単膜の破断強度

3.2.4 クリーン度

^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊反応のスペクトルは Q 値は 2.47MeV 付近にはさまざまなバックグラウンド信号が存在する。したがって、より感度の良い実験を行うにはバックグラウンドを除去することが重要である。これまでで唯一 $0\nu\beta\beta$ 崩壊反応を観測したと主張している KKDC-calim の結果も統計的優位性こそ高いとされているが、バックグラウンドの除去が十分でなかったため、その結果自体は信用されていない。本実験においてフィルムから発生すると考えられており、主なバックグラウンドとなる放射能物質は ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K である。それぞれの目標値は(表 3.1)で示した通り $^{238}\text{U} < 10^{-12}\text{g/g}$ 、 $^{232}\text{Th} < 10^{-12}\text{g/g}$ 、 $^{40}\text{K} < 10^{-11}\text{g/g}$ である。ただし、K の除去は直接的なバックグラウンドを減らすことではなく、タギングが目的である。今回はその測定を外部の測定機関に依頼した。また、膜と共に膜の原材料であるパレットも測定していただいた。

測定方法

U と Th に関しては ICP-MS。K に関しては炎光分析にて測定した。

※ ICP-MS

アルゴンガスに高電圧をかけて、アルゴンをプラズマ化させる。アルゴンプラズマに試料を噴霧する。プラズマによって試料が過熱分解されイオン化する。イオン化した元素は、(質量/電荷数)に応じて分離され検出器に入り、電気信号を出力する。この信号の強さから試料中の目的の元素の質量を計測する。

※炎光分析

炎色反応を利用した微量分析法である。まず、酸素と燃料を管理し、安定した炎をつくる。その炎に一定流量で試料を供給する。元素によってある特定波長に強いスペクトルを放出する。その波長の

発光量をモノクロメーターで観測し、試料中の目的の元素の質量を計測する。励起エネルギーが小さいアルカリ金属に向いている微量分析法である。

測定結果

測定結果を表 3.6 に示す。測定結果によると EVOH フィルムはどのタイプも K が多く含まれていた。ナイロンの膜は今回測定した全てのサンプルにおいて U、Th が多く含まれていた。HEPTAX は U、Th、K すべて目標値を超えてしまっていた。

今回の測定では、ペレットの段階では全ての項目をクリアした材質もあったが、膜の測定ではクリアした膜は無かった。したがって、今後は EVOH を膜の作成過程で K を含まない製法を開発するか、新たに目標値をクリアしたクリーンなフィルムを見つけることが必要である。

A 社ペレットの K はナチュラル K の値であるので別途要計算である。

種類	タイプ	厚さ (μm)	^{238}U (10^{-11}g/g)	^{232}Th (10^{-11}g/g)	^{40}K (10^{-11}g/g)
ナイロン	ON (東洋紡)	15	2.1	110	1.2
	ON (東洋紡)	25	2.4	42	< 1.2
	ON ペレット (東洋紡)		2.2	9.4	< 1.2
	興人	15	1.5	59	14
	ユニチカ	25	5.7	24	2.3
	A 社ペレット		< 1.0×10^{-2}	< 1.0×10^{-2}	< 2.5×10^2
EVOH	XL	12	< 4.0	< 3.0	130
	E	2.1	< 4.0	< 3.0	120
	XL	15			140
	HS	30			260
	ペレット (DC)		< 0.5	< 0.5	< 0.12
	ペレット (AT)		< 0.5	< 0.5	< 0.12
HEPTAX	HPX	25	9.5	90	2.3

表 3.6: 単膜およびペレットの放射性不純物含有量

3.2.5 経年変化 耐液性

ここでは、単膜の経年変化、耐液性について、膜の光透過率の変化、強度の変化、液体シンチレータの光透過率の変化を測定した。本来であれば、実際に長期間液体シンチレータに膜を浸した状態で保存し測定を行うが、今回はそれだけの時間がなかった。そこで、恒温槽 (図 3.20) を用いた加速効果を利用し、長期安定性の測定を行った。

アレニウスの式

$$k = A \times \exp(-E_a/RT) \quad (3.1)$$

(k :速度定数、 A :頻度因子、 E_a :活性化エネルギー、 R :気体定数、 T :温度)

この式によると、KamLANDの装置温度の約15°Cを基準とすると、恒温槽(45°C)に保存したナイロンとEVOHはそれぞれ約5.9倍、約8.8倍の加速効果が得られる。



図 3.20: 恒温槽

膜の光透過率の変化

KamLAND-Zenは長期間行われる実験である。液体シンチレータの発光量の低下は純化作業により回復させることができるが、現在の段階ではフィルムの光透過率は新品を使用する以外の方法がなく、回復は難しい。ここでは長時間フィルムを液体シンチレータに浸したことによるフィルムの光透過率の変化を測定した。

測定方法は3.2.2と同様の方法で行った。

結果

サンプルのうちいくつかの測定結果の図を以下に示す。

ほとんどのサンプルにおいては光透過率の変化は認められなかった。ただし、HF1タイプの光透過率の変化は96% → 93%(400nm)と大きく低下していた(原因は不明)。

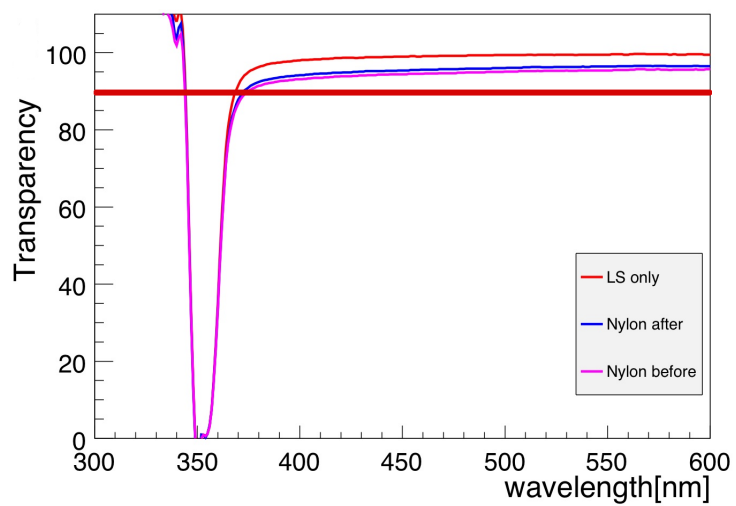


図 3.21: ナイロンの光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)

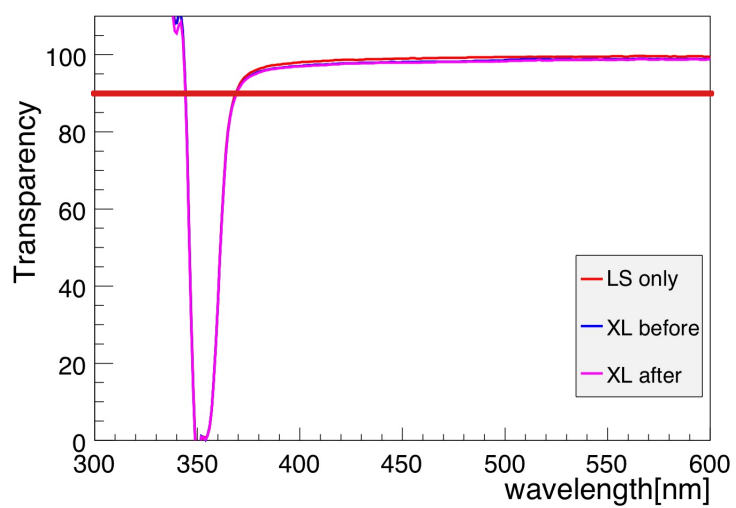


図 3.22: EVOH(XL) の光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)

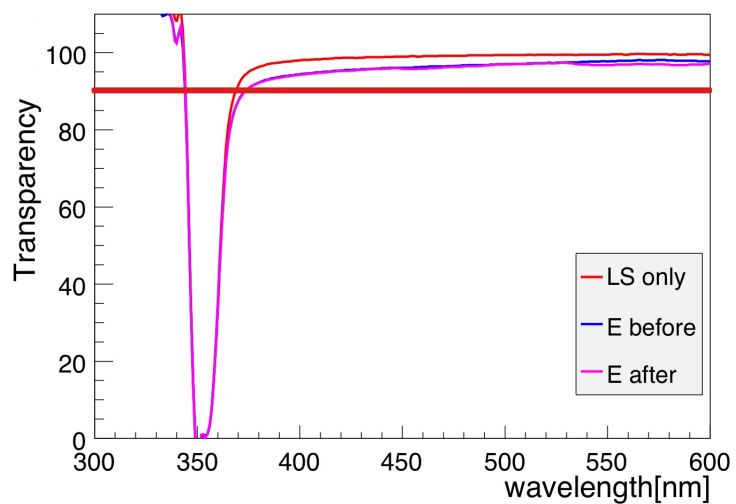


図 3.23: EVOH(E) の光透過率の変化 (恒温槽 8 日間保持)

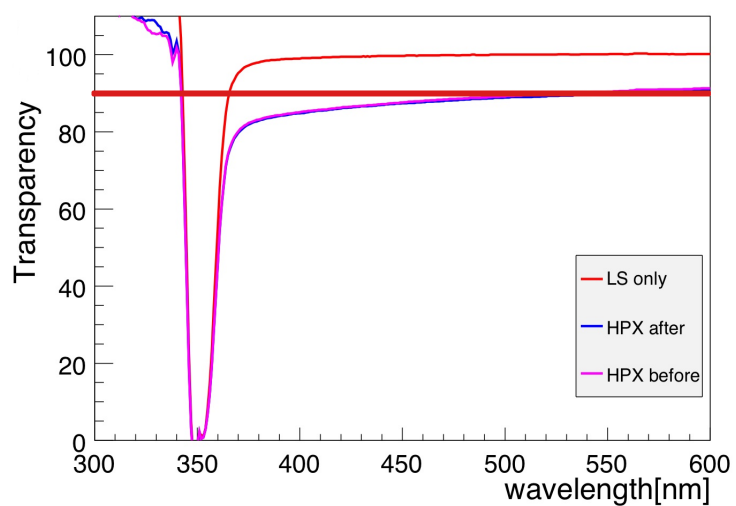


図 3.24: HEPTAX(HPX) の光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)

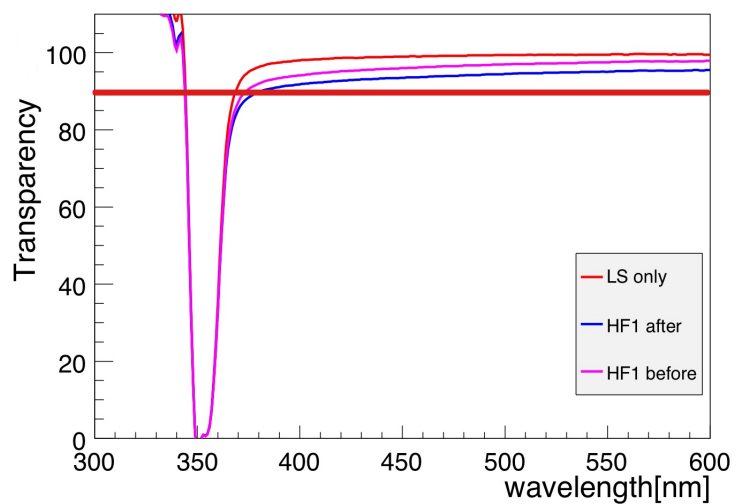


図 3.25: HEPTAX(HF1) の光透過率の変化 (恒温槽 8 日間保持)

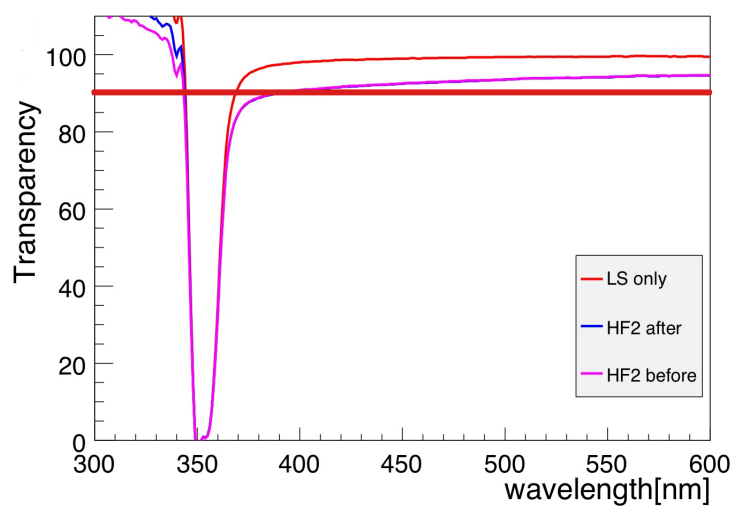


図 3.26: HEPTAX(HF2) の光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)

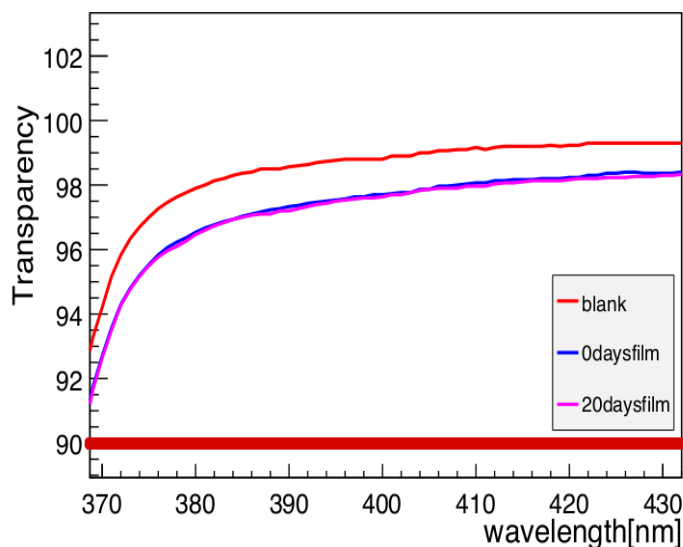


図 3.27: HEPTAX 型フィルム (Nylon/EVOh/Nylon 15 μ m) の光透過率の変化 (恒温槽 20 日間保持)

膜の強度の変化

長期間液体シンチレータに膜を浸したときの膜の破断強度の変化を測定した。測定方法は 3.2.3 と同様の方法で行った。

結果

表 3.7 に測定の結果を示す。今回は X 社のフィルムを含めて全ての試験サンプルがチャックのエッジ部で破断してしまった。したがって、実際の強度は表の値より大きいと予想できる。また、保持期間がサンプル毎に異なるが、エージング後に明らかに大きく強度が低下した試験サンプルは無かった。XL タイプは単膜の試験時は目標をクリアしていなかったが、エージング試験では目標値をクリアしていた。ただし、全体的にエラーが大きいためデータの扱いには注意が必要である。

X 社がエージング後では 5 回の測定全てがエッジで破断してしまった。この理由としては、膜がエージングを行うことにより裂けやすくなったことか、チャックの改良が不完全なことが考えられる

種類	タイプ	厚さ (μm)	保持日数 (day)	エージング前 (N/cm)	エージング後 (N/cm)
ナイロン (ユニチカ)		25	40	34.3 ± 4.9	30.7 ± 2.3
EVOH(クラレ)	XL	12	40	8.4 ± 0.7	10.0 ± 2.8
	E	8	30	15.5 ± 0.8	15.4 ± 1.2
	HS	30	8	14.4 ± 1.2	16.4 ± 2.7
HEPTAX(グンゼ)	HPX	25	40	28.2 ± 3.0	26.5 ± 3.8
	BH	25	8	11.7 ± 1.1	11.4 ± 1.0
	HF1	15	8	13.6 ± 1.3	11.3 ± 1.1
	HF2	15	40	16.5 ± 2.3	13.0 ± 1.1
X 社		15	20	33.4 ± 1.4	17.8 ± 0.37

表 3.7: 単膜の破断強度変化 45°C で保持

液体シンチレータの光透過率の変化

液体シンチレータへ膜の溶け出しがないかを、長期間膜を液体シンチレータに浸した時の液体シンチレータ側の光透過率の変化を測定した。

試験方法

エージング試験に用いた液体シンチレータの光透過率を分光光度計にて測定した。

結果

光透過率が著しく低下した試験サンプルは無かった。最大幅低下したサンプルは EVOH の BH タイプの液体シンチレータであり、光透過率は約 1%(400nm) 低下していた。

※ちなみに図 3.28 は液体シンチレータ自体の光透過率の変化を示す。この図から、窒素バブリングを行った液体シンチレータの光透過率は 400nm 付近では低下しないことが読み取れる。

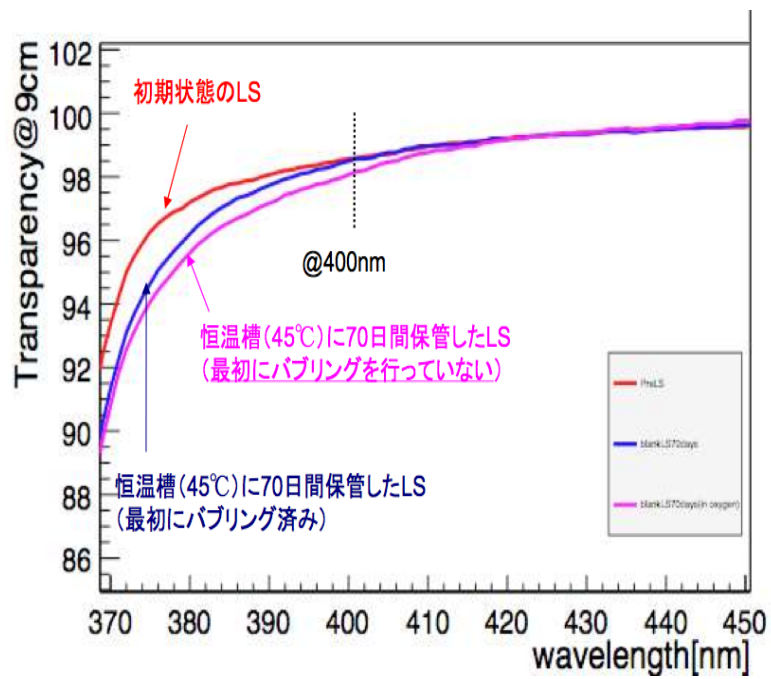


図 3.28: 液体シンチレータのみでの光透過率の変化 (恒温槽 40 日間保持)

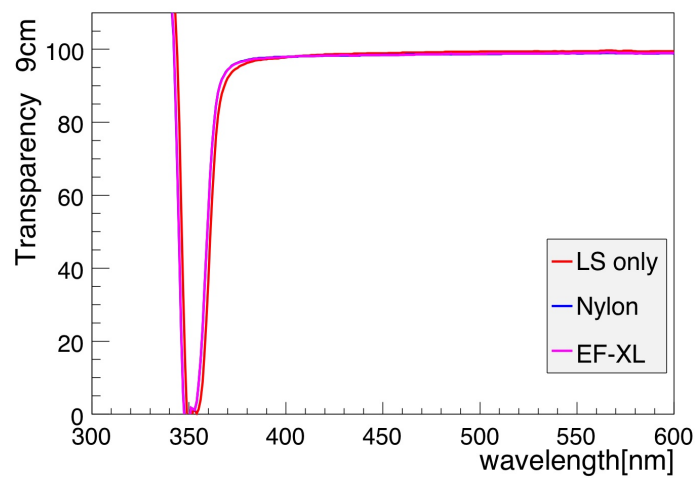


図 3.29: 膜を入れなかった液体シンチレータと Nylon と EVOH-XL が浸った液体シンチレータの光透過率

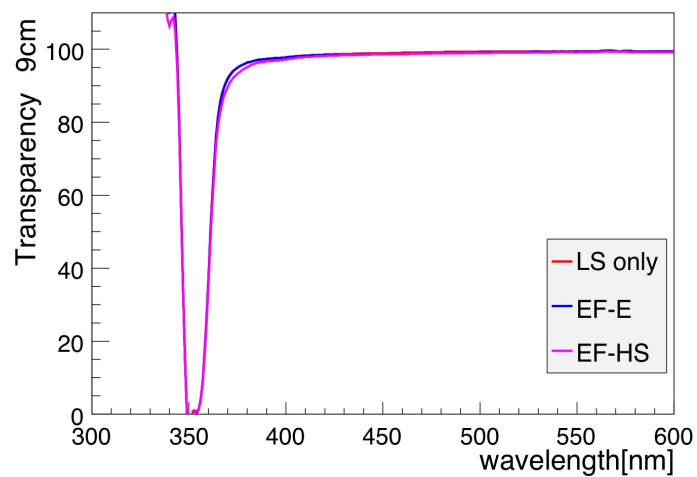


図 3.30: 膜を入れなかった液体シンチレータと EVOH-E と EVOH-HS が浸った液体シンチレータの光透過率

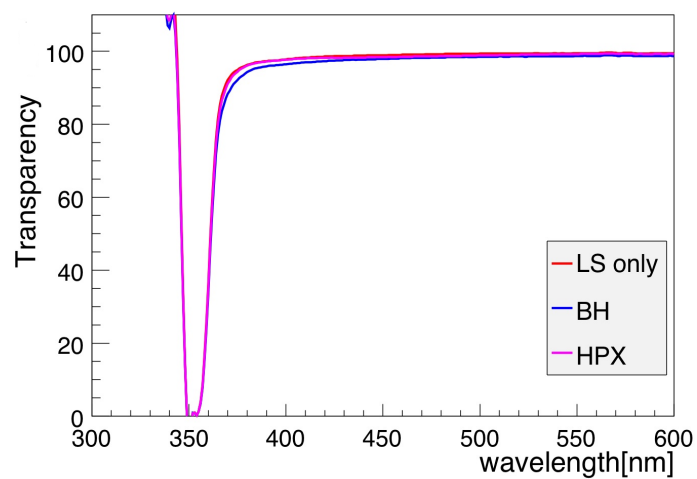


図 3.31: 膜を入れなかった液体シンチレータと HEPTAX-BH と HEPTAX-HPX が浸った液体シンチレータの光透過率

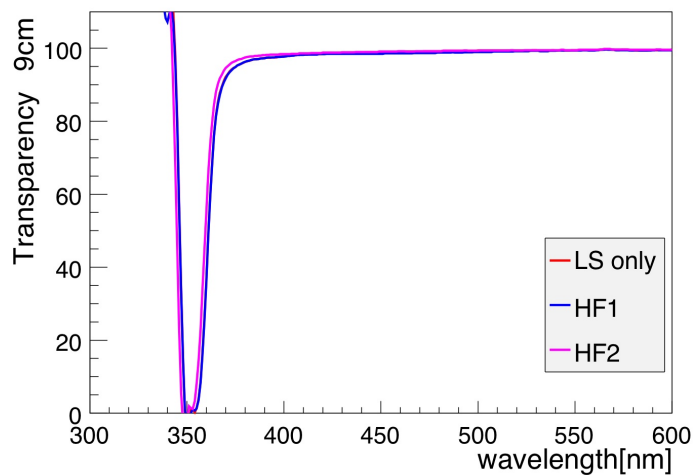


図 3.32: 膜を入れなかった液体シンチレータと HEPTAX-HF1 と HEPTAX-HF2 が浸った液体シンチレータの光透過率

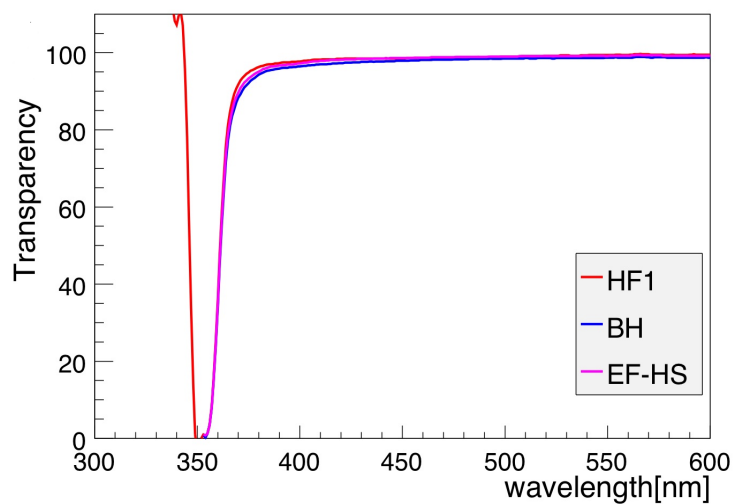


図 3.33: HEPTAX-HF1 と HEPTAX-BH と EVOH-HS が浸った液体シンチレータの光透過率

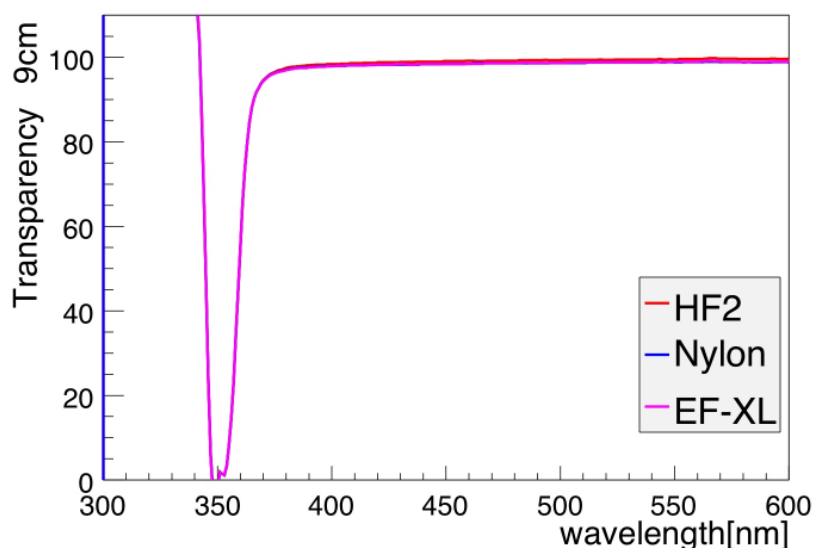


図 3.34: HEPTAX-HF2 と Nylon と EVOH-XL が浸った液体シンチレータの光透過率

3.3 単膜の選定のまとめ

ここで、ここまで行ってきた単膜の選定のまとめを行う。項目別の合否を下の表 3.8 に示す。以下の表より Nylon と EVOH の各種は放射性不純物含有量をクリアしたフィルムこそ見つけられなかったもののそれ以外の項目には問題が無かった。また、ペレットの状態ではあるが Nylon、EVOH ともに有望な候補は見つかった。また、そのペレットを使用した膜を作成していただく機関も見つけることができた。ただし、HEPTAX 各種はエージング前の状態から光透過率が高くなく、耐液性にも不安がある。また、Ny/EVOH/Ny フィルムに関しては Xe バリヤー性と、経年変化、耐液性の実験は完了していないが、有力な候補になりうるため今後もこの膜の研究を続けていくこととした。

表 3.8: 単膜の試験のまとめ

種類	タイプ	厚さ (μm)	Xe バリヤー性	光透過率	破断強度	経年変化 耐液性
ナイロン(ユニチカ)		25	○	○	○	○
EVOH(クラレ)	XL	12	○	○	△	○
	E	30	○	○	○	○
	HS	30	○	○	○	○
HEPTAX(グンゼ)	HPX	25	○	×	○	○
	BH	25	○	△	○	×
	HF1	15	○	○	○	×
	HF2	15	○	△	○	×
Ny/EVOH/Ny(X社)		15	/	○	○	/

3.4 溶着方法の決定

今回の製作する mini-balloon は直径 3.2m と大きく、また形状もバルーン型のため膜同士を溶着させる必要がある。現在の KamLAND で使用しているバルーン膜の接着方法はアドコートという接着剤を用いた方法であるが、接着剤には多量の放射性物質を含んでいるため、今以上の極低放射能空間を必要とする KamLAND-Zen 実験にはこの方法を採用することはできない。また、数十 μm の薄さの膜を接着剤を用いてバルーンを作成することは困難であることが分かっている。したがって、今回新しい溶着方法を考える必要が生じた。この節では、その溶着方法を決定するまでのプロセスを述べる。

溶着方法の種類

今回試験サンプル作成に用いた溶着方法は「インパルス溶着(熱溶着)」と「超音波溶着」と「RF(高周波)溶着」である。これらは全てフィルムの熱可塑性を利用した溶着方法である。これらの溶着方法の利点は接着剤を用いた膜の接着に比べて放射性不純物を減らすことができる点である。

インパルス溶着

フィルムに瞬間的に電流を流しフィルムを加熱する。フィルムの融点を超えるとフィルム同士が分子レベルで結合するのでフィルムに圧力をかけフィルムを溶着させる。

超音波溶着

フィルムに超音波振動を与え摩擦熱によりフィルムを加熱する。フィルムの融点を超えるとフィルム同士が分子レベルで結合するのでフィルムに圧力をかけフィルムを溶着させる。

RF(高周波)溶着

高周波をフィルムに照射し、分子、原子レベルで振動を起こし、フィルムの融点を超えるとフィルム同士が分子レベルで結合するのでフィルムに圧力をかけフィルムを溶着させる。

3.5 溶着膜の選定

前回の節までで、単膜の素材、溶着方法を絞り込むことができた。次に、実際に溶着膜を作成し、KamLAND-Zen 実験により適している溶着膜を選定した。この節では、単膜と同様に溶着膜に求められている条件とその条件に対しての実験の方法とその結果を述べる。

求められている条件は以下の3点である。

Xe バリヤー性

Xe の漏れの許容量 4kg/ 5year

力学的強度

膜の破断強度 10N/cm

経年変化 耐液性

上記の条件が5年間クリアし続けること。

3.5.1 Xe バリヤー性測定

単膜のときと同様に溶着膜の主に溶着部からの Xe の漏れの有無について確認する必要がある。

Xe 透過試験容器の改良

初期型の透過試験容器では Xe の透過を確認できなかったため、S(フィルムの液体シンチレータに接している面積)/V(液体シンチレータの体積)の比を初期型の4倍にした透過試験容器を開発し、測定感度を4倍にした。

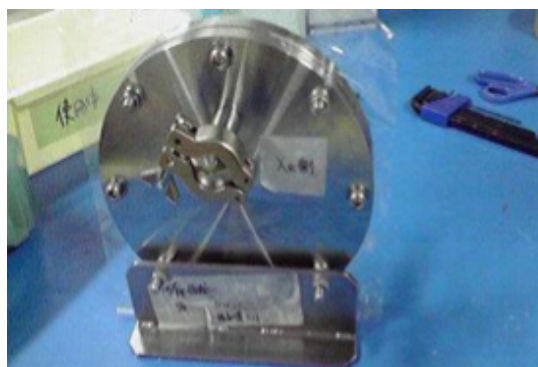


図 3.35: 膜透過試験容器 (初期改良型)

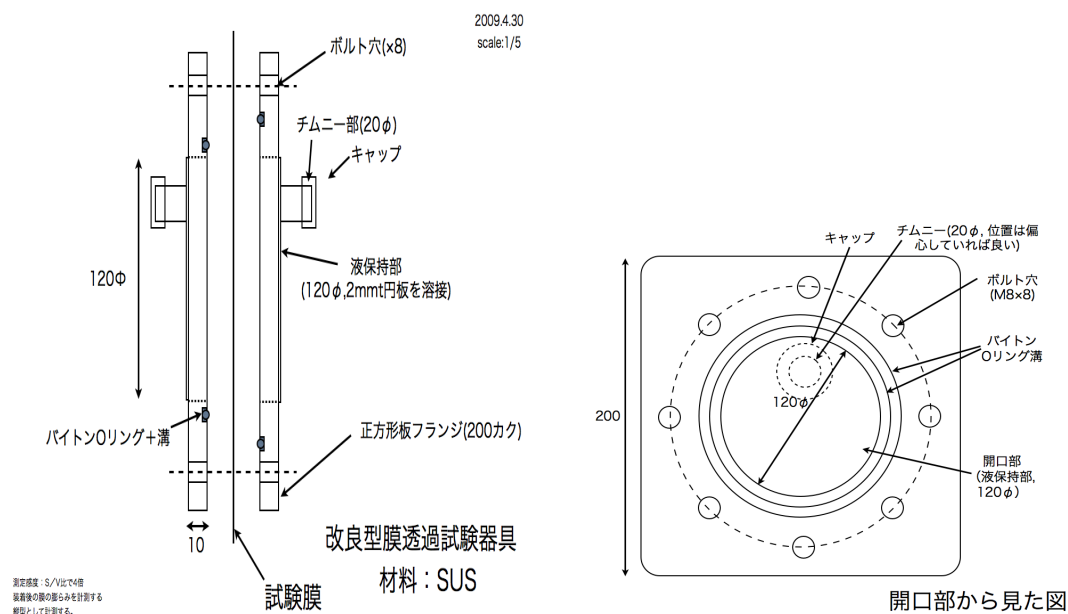


図 3.36: 膜透過試験容器 (初期改良型)

実験方法

単膜と同様の試験を行った。溶着線が真ん中を通るように固定し、恒温槽にて保存し、その後ガスクロマトグラフィーにて Xe の漏れだしを測定した。

実験結果

結果は表 3.9 に示す。ナイロンの超音波溶着は透過試験容器に液体シンチレータを注いだ瞬間に漏出していた。ナイロンのインパルス溶着は一条線と二条線ともに Xe の透過を観測したが、5年間で許容される Xe の漏れ量の目標値である 4kg はクリアした。また、EVOH のサンプル溶着膜は Xe の漏れは観測できなかった。5年間で予想される Xe 量の上限值は表の値の通りである。

表 3.9: 5年間で予想される Xe の漏れ 45°C で保有

種類	タイプ	保有期間 (日)	厚さ (μm)	5年間で予想される Xe の漏れ (kg)
ナイロン	インパルス溶着	10	25	2.4
	インパルス溶着 (二条線溶着)	5	25	1.0
	超音波溶着	0	25	漏出
EVOH	XL + HS + XL インパルス溶着	60	12	< 0.18

3.5.2 破断強度測定

単膜と同様に溶着膜についても 10N/cm 以上の強度が求められる。

実験方法

単膜のときと同じく引っ張り試験機を用いて、3.2.3 と同様の実験を行った。

結果

測定結果を以下の表 3.10 に示す。今回の実験も試験サンプルのいくつかはチャックのエッジ部で破断してしまった。したがって、実際の値は表の数字よりも良いと期待できる。溶着部は予想通り単膜に比べて、強度が低下していた。けれども、目標値である 10N/cm はクリアしていた。強度に関しては現在の溶着方法、溶着膜で問題ないと考えられる。

種類	タイプ	(N/cm)
Nylon(ユニチカ)	Nylon 単膜 (25 μ m)	29.4 \pm 0.90
	インパルス溶着 延伸 Nylon(25 μ m)+延伸 Nylon(25 μ m)	25.6 \pm 1.32
	超音波溶着 延伸 Nylon(25 μ m)+延伸 Nylon(25 μ m)	10.9 \pm 1.09
	インパルス溶着 (2 条線溶着) 延伸 Nylon(25 μ m)+延伸 Nylon(25 μ m)	25.9 \pm 0.54
	インパルス溶着 延伸 Ny(25 μ m) +無延伸 Ny(30 μ m)+ 延伸 Ny(25 μ m)	32.0 \pm 1.02
EVOH(グンゼ)	XL 単膜 (12 μ m)	8.8 \pm 0.7
	HS 単膜 (30 μ m)	14.4 \pm 1.2
	インパルス溶着 EF-XL(15 μ m)+HS(30 μ m)+XL(15 μ m)	11.0 \pm 0.76
X 社	インパルス溶着 Ny/EVOH/Ny15 μ m +Ny/EVOH/Ny15 μ m	21.14 \pm 1.4

表 3.10: 溶着サンプルの破断強度 45°C で保持

3.5.3 経年変化 耐液性

溶着部の経年変化、耐液性についても知っておく必要がある。ここでは、溶着膜の経年変化、耐液性について、溶着膜の破断強度の変化を測定した。単膜と同様に溶着膜の計測も恒温槽 (図 3.17) を用いた加速効果を利用した。さらに、液体シンチレータの体積と対する膜の面積の比を実際の KamLAND で使用するとき以上にすることで計測の感度も高めた。

膜の面積と液体シンチレータの体積比について

KamLAND

ミニバルーンの膜の面積 $S = 32.2m^2$

ミニバルーンの体積 $V = 17.1m^3$

$S/V = 1.88m^{-1}$

サンプル保存環境

膜の面積 $S = 540cm^2$

液体シンチレータの体積 $V = 150cm^3$

$S/V = 360m^{-1}$

したがって、今回の実験の結果は約 200 倍感度があるといえる。

溶着膜の強度の変化

長期間液体シンチレータに膜を浸したときの溶着膜の破断強度の変化を測定した。測定方法は 3.2.3 と同様の方法で行った。

結果

表 3.11 に測定の結果を示す。今回ほとんどのサンプルがその溶着部で破断した。ただし、一部は単膜のときと同様にチャックのエッジ部で破断した。したがって、実際の強度は表の値より大きいと予想できる。また、保持期間がサンプル毎に異なるが、エージング後に明らかに強度が低下した試験サンプルは無かった。ナイロンの超音波溶着サンプルは目標値の 10N/cm を下回った。

種類	タイプ	保持日数 (day)	エージング前 (N/cm)	エージング後 (N/cm)
Nylon	インパルス溶着 Nylon+Nylon	30	25.6 ± 1.32	27.1 ± 0.53
	超音波溶着 Nylon+Nylon	30	10.9 ± 1.09	9.7 ± 0.48
EVOH	インパルス溶着 XL+HS+XL	50	11.0 ± 0.76	12.1 ± 0.52

表 3.11: 溶着膜試験サンプルの破断強度変化

3.6 溶着膜の選定のまとめ

KamLAND-Zen ではこれまで以上の低放射能環境が必要なため、溶着膜の接着方法は接着剤を用いないインパルス溶着と超音波溶着、RF(高周波)溶着という溶着方法が候補となった。RF 溶着膜は目視の段階で溶着にムラがあり、求められている条件をクリアしていないことが明白であった。超音波溶着膜の溶着部は単膜の破断強度と比べて著しくその強度の低下が確認された。また、EVOH のインパルス溶着の破断強度も目標値をわずかに超えている程度まで低下してしまった。したがって、今回測定した結果、ナイロン膜を用いたインパルス溶着による溶着膜が有望であると考えられる。

第4章 mini-balloonの構造の決定

第3章までで mini-balloon に用いるフィルムや溶着膜を（ある程度）決定することができた。けれども、バルーン型（球状）を一枚の膜で作成するのは不可能である。また、KamLAND で用いるバルーンにはそれをチムニーから吊るすために、完全な球形ではなく気球のような形状である。したがって、強度や光透過度の面から膜の接着の構造を議論する必要がある。この章では、どのように膜を接着してバルーンを形作るかについて、mini-balloon のより詳細な構造を決定する。

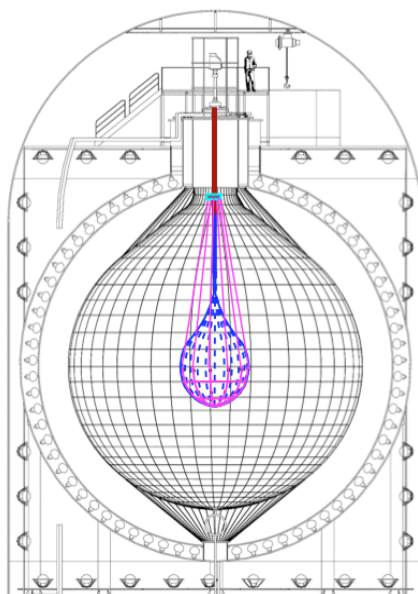


図 4.1: mini-balloon を投入した概要図

4.1 直径

バルーンの直径は、使用する Xe の量に直接関係する。Xe を過不足無く用意した分を使い切ることが要求される。

本実験の第1段階では 400kg の Xe の使用を想定している。また、液体シンチレータへの Xe の溶

解度は約 3%wt であるから、Xe を溶かした液体シンチレータは $17.1m^3$ 作ることが可能である (式 4.1)。したがって、この値から mini-balloon の直径は 3.2m と決定した。

$$V_{LS} = m_{Xe} \div S \div \rho_{LS} \quad (4.1)$$

ここで V_{LS} は液体シンチレータの体積、 m_{Xe} は Xe の質量、S は Xe の液体シンチレータに対する溶解度 (質量%)、 ρ_{LS} は液体シンチレータの密度を表す。また、値はそれぞれ $m_{Xe} = 400(kg)$ 、 $S = 3$ (wt%)、 $\rho_{LS} = 0.78(g/cc)$ である。この値を式 (4.1) に代入すると、 $V_{LS} = 17.1m^3$ となる。

4.2 ゴアの数

バルーンを作る際下図のような、ゴア (図 (4.3)) と呼ばれるものを溶着し球形のバルーンを作る。基本的にはゴアの数が多い方がよいとされている。なぜならば、バルーンがより球体になることで観測効率が上がるためである。しかし、ゴア数が多くなると溶着部の増加によって、Xe バリヤー性の低下 (3.4.1 参照)、光透過率の低下 (図 4.2 を見ると溶着部が明らかに光透過率が低くなっているのが分かる。)、力学的強度の低下 (3.4.2 参照)、放射性物質の増加が予想される。したがって、現在は確定はしていないが、ゴアの数 は 24 枚で行うことが有力である。



図 4.2: 溶着部 (Ny 同士の溶着部)

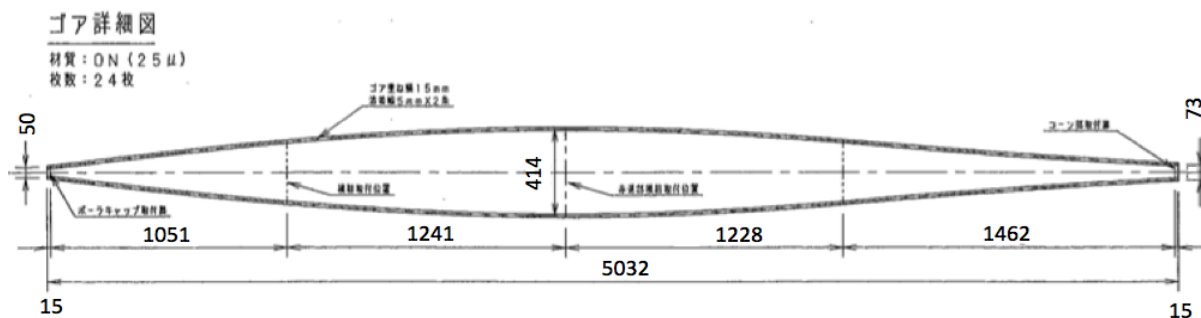


図 4.3: ゴアの図

4.3 ガイドロープ

観測効率を上げるために投入したバルーンを実験装置の中央で留めておく必要がある。そこで mini-balloon の固定を目的にガイドロープを使用することにした。また、ガイドロープにはバルーンの保護の役割もある。ここでは、ガイドロープの材質の決定や、バルーンの支え方について述べる。

4.3.1 求められる条件

クリーン度

極低放射能空間を目指す私たちにとって、ガイドロープも大きなバックグラウンド源なる。したがって、ガイドロープのクリーン度も重要なファクターである。

強度

液体シンチレータの密度差から生じる圧力を支えるだけの強度が求められる。密度差が 0.1 % だと仮定すると、ガイドロープ全体が支える総重量は約 14.3kg である。したがって、1 本あたりにかかる加重を膜と同じく 10 N/cm と同程度にするとすると、ガイドロープは 12 本が妥当と考えられる。

4.3.2 クリーン度の測定

クリーン度について、さまざまな候補を外部機関で測定していただいた。下がその結果の表 4.1 である。今回の測定によると、どの候補も放射性不純物を多く含んでいた。したがって、強度とクリーン度またハンドリングのしやすさの利点を考え、クリーンナイロン 25 μ m をガイドロープに使うこ

とにした。

このクリーンナイロンは強度面での条件もクリアーしている。

種類	U ($10^{-11}g/g$)	Th ($10^{-11}g/g$)	^{40}K ($10^{-9}g/g$)
Kevlar	49	7.4	1.4
Kevlar (UW)	16	63	0.67
Kevlar (W)	8.3	-	1.8
Zylon(UW)	320	38	50
Zylon(W)	340	-	4.6
Technola	3700	8100	2.1
Technola	3600	12000	7
Vectran	14	28	13
Vectran	9.7	12000	7
Dyneema	5.6	50	17
Dyneema	7.2	8.7	11
Dyneema(Fishing Line)	8.4	12	1.1
Spectra	220	900	22
Carbon fiber	< 240	< 700	< 0.6

表 4.1: 紐の候補の放射性不純物含有量

4.3.3 破断強度測定

ここでは、紐の破断強度測定の測定方法とその結果について述べる。

紐の材質にはクリーンナイロン 25 μ m を用いた。今回試験した紐にはその加工により、いくつかのタイプがある。なお、単膜での使用は、不意に傷や切れ目が生じた際強度に不安があるため今回は候補にしなかった。

また、さらにそれぞれの種類に対して「ねじり」、「つなぎ目」、「輪っか」、「切れ目を入れた」という条件を加えて測定を行った。

試験膜の溶着の概要 紐の構造の候補として3種類用意した。それぞれの溶着は図 4.4、4.5、4.6 のようになっている。

実験方法

試験機は単膜や溶着膜の破断強度測定に用いた引っ張り試験機を使用した。また、輪っか部の測定は直接チャックで挟むことができない。そこで図 4.7 のように試験機を上下逆さにセットし、ベクト



図 4.4: 単膜の両端を折って、端を溶着



図 4.5: 2枚の膜を中心で溶着

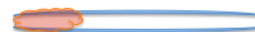


図 4.6: 2枚の膜を片端で溶着

ラン糸を壁にかけて破断強度の測定を行った。

実験結果

実験結果を以下の表にまとめた。3種類の中では、切れ目（2枚とも）を除き、中心で溶着が最も強かった。また、ねじり試験時にエッジで切れることが多い原因は、溶着部が端にあるためだと思われる。したがって、溶着部はひねりに弱いことがわかった。これは溶着部の結晶化により強度が低下したからだと考えられる。また、中心で溶着したひもは1枚だけに切れ目を入れて引っ張った試験の際に中央の溶着線にて破断が一時的に止まる現象が起こった。

目標値である $30N/3cm$ は全ての項目でクリアしていた。

溶着の種類	通常*	ねじり	つなぎ目	輪っか	切れ目	1枚のみ	2枚とも	溶着部
真ん中	205	200.3	144.8	193.1		112.8	69.0	
片側溶着	217	131.3	130.9	172.3		112.0	85.4	79.0
両側溶着	155	110.7	87.8	99.1				56.8

表 4.2: 紐の破断強度 ($N/3cm$)

※通常状態はメーカー公称値

紐の破断強度測定のまとめ 通常部での強度は溶着膜の数が作用し、1枚の単膜だけのものが弱かった。また、ひねりに関しては中央で溶着したもの以外のサンプルはチャックのエッジ部にて破断してしまった。この要因として考えられるのは溶着部が熱により結晶化していることである。結晶化によって膜の強度が失われたことにより、ひねりなどの力の向きに弱いということが今回の実験結果から推測される。2枚のうちの1枚だけに、切れ目を入れたとき中央を溶着したサンプルだけは、膜の破断が溶着部で一時停止し、写真のように溶着部にそって裂けた。2枚ともに切れ目を入れた場合は、どの種類のサンプルも溶着部で破断は停止しなかった

以上の結果より、ナイロン紐は中央で溶着されたものを使用することが決まった。強度も要求された値を満たしている。



図 4.7: 輪っか部の測定方法

4.3.4 ガイドロープの配置

ガイドロープとバルーンとの配置は図 4.8 のように決定した。ゴア 24 枚に対し、縦のガイドロープは 12 本とした。バルーンに対して、緯度方向の横糸と。経線方向の縦糸がある。基本的には主に縦糸だけでバルーンを支えている。横糸は球状の形を保つために設置した。南極部の集中した縦糸を周回させる部分は特に力が加わると考えられるため、南極部の周回紐には強度の優れたダイニーマ糸の使用が決まった。定量的な判断は難しいが、ガイドロープの設置により mini-balloon の安定性が高まったと言える。

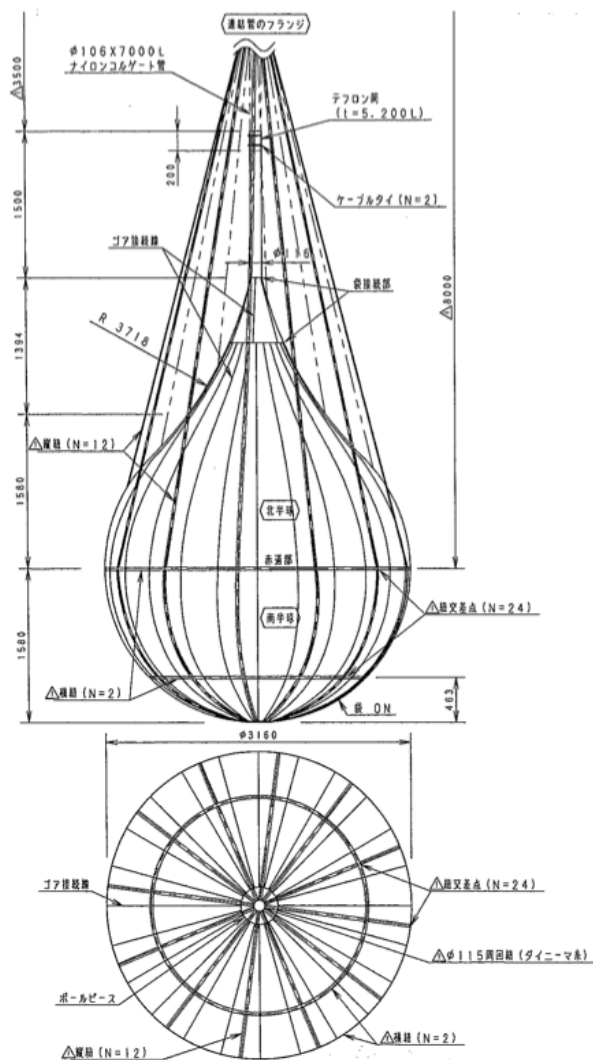


図 4.8: ゴアとガイドロープの関係

4.3.5 ガイドロープの加工

使われる場所によってガイドロープを加工する必要がある。必要な部分は、

- 両端部
- 縦糸と横糸との交差部

である。

両端部

両端部は周回させる必要がある。したがって、束ねるための紐が通させるために輪っか上にする必要があった。したがって、図 4.9 のように端を折り返し、その部分を溶着する加工を加えた。

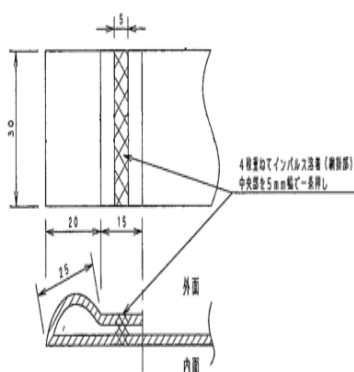


図 4.9: ガイドロープの端

交差部

縦糸と横糸がなんらかの原因で絡まってしまうと、ガイドロープやバルーンに偏った力が働いてしまい、実験の安定性が損なわれてしまう。したがって、図 4.10 のようにあらかじめ、縦と横をインパルス溶着させ、絡むのを予防した。また、膜と溶着させると膜に予期せぬ応力が働く恐れがあるので、バルーン自体とは溶着させていない。

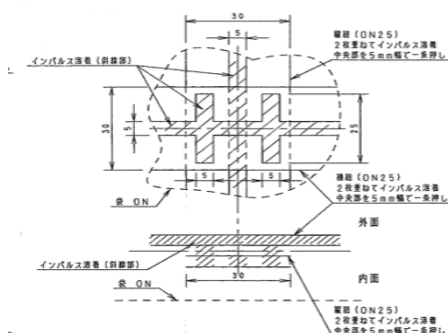
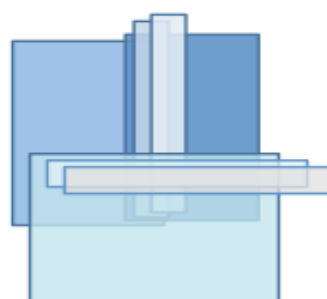


図 4.10: ガイドロープの交差部

4.4 溶着膜 T 字部

前章まででバルーンの構造は決定した。ただし、この構造ではバルーン部とチムニーへ連結させる部分の間の溶着が複雑になり、T字型で溶着される部位が生じる。この部分はほかに比べて溶着線が込み合ってしまう、強度とXeバリアー性に影響がある可能性がある。ここでは、T字部の強度とXeバリアー性についての評価について述べる。T字部の層構造は図 4.11 に示す。



コメント

図 4.11: 試験サンプルの層構造

4.4.1 Xe バリアー性の測定

T字部位に関しても他の部位と同程度のXeバリアー性が要求される。ここではT字部のXeバリアー性の測定について述べる。

測定方法

溶着膜での測定と同様に、溶着線が液体シンチレータに触れるように設置し、ガスクロマトグラフィを用いて Xe の漏れを検出した。

実験結果

表 4.3 に結果を示す。単膜と比べると T 字部の Xe バリヤー性は低下していた。面積比で考えると T 字部の面積はミニバルーン全体の 5000 分の 1 程度である。したがって、そのことを考慮すると T 字部の Xe の漏れは非常に多い。

	5 年間の予想 Xe 漏れ量 (kg)
T 字部溶着膜	$5.63 \times 10^{-1} \pm 3.11 \times 10^{-2}$

表 4.3: T 字部における 5 年間で予想される Xe の漏れ

4.4.2 T 字部の破断強度測定

バルーンの他の部分と同じく、T 字部においても目標値として 10N/cm 以上の強度が要求される。

測定方法

引っ張り試験機による破断強度を測定した。使用器具、実験装置は単膜、溶着膜のときに使用したもと同じである。試験サンプル膜は溶着線の違う 2 種類 (1 条押出と 2 条押出) 用意した。材質は共に東洋紡のクリーンナイロン (厚さ: $25\mu\text{m}$) である。試験サンプルは図のように幅 3cm にカットした。溶着線の幅は 1 条押出が 5mm 、2 条押出が 7mm であった。引っ張る方向は図 4.12 の Y 軸方向である。

測定結果

測定結果を下の表に示した。値は 2 回試験した平均値である。2 種類とも、その結果に大きな差は無かった。若干、1 条押出のサンプルの方が、強度は大きかった。2 条押出が弱かった理由としては、膜を加熱する時間が長くなり、膜の結晶化が進みもろくなってしまったことが考えられる。目標値 (10N/cm) は共にクリアしていた。

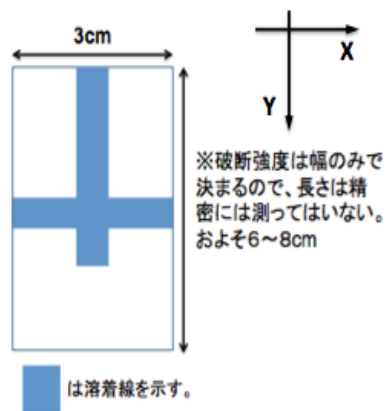


図 4.12: T 字部の試験サンプルのカット寸法

試験サンプルの種類	破断強度 (N/3cm)
1 条押出	112.0
2 条押出	99.7

表 4.4: T 字部の破断強度

第5章 まとめ

5.1 単膜

Xeバリアー性では今回測定したサンプルはすべて目標値をクリアしていた。光透過率では Heptax の HPX タイプが目標値をクリアしていなかった。強度に関しては EVOH の XL タイプが目標値をクリアしていなかった。経年変化、耐液性に関しては膜の光透過率の変化の実験で Heptax の HF1 に低下が認められた(ただし原因は不明)。また、今回試験したサンプル膜の中にはクリーン度をクリアしたものは見つけられなかった。けれども、ペレットの段階においてはクリーン度をクリアした有望な候補を見つけることができた。

したがって、そのペレットを用いて作成したクリーンナイロン (25 μ m) と X 社 (Nylon/EVOH/Nylon 15 μ m) の2種類の膜が有望な候補として残っている。今後はこれらの膜に対して、溶着の最適条件の探索、耐液性などのチェックを行っていく。

5.2 溶着膜

溶着方法はインパルス溶着(熱溶着)と超音波溶着、RF(高周波)溶着の3通りの方法が候補に挙げたが、強度の観点からインパルス溶着が最も優れていることがわかった。インパルス溶着に関しては、ナイロンの溶着膜、EVOHの溶着膜、ともにすべての測定項目の目標値をクリアしていた。ただし、強度の観点からナイロンの溶着膜の方が優れていると思われる。また、インパルス溶着の溶着方法として1条溶着と2条溶着の候補が出たが、熱によって膜が結晶化してしまい強度、ガスバリアー性の観点から1条溶着での溶着が有望である。またX社の溶着膜(インパルス溶着)に関しては強度に関してはクリアしており、ほかの項目については今後チェックしていく。

5.3 総合

今回の研究により、KamLAND-Zen 実験に用いられる Xe を溶解させた液体シンチレータを入れるバルーン膜の選定、その溶着方法がかなり絞り込むことができ、実験に用いられるバルーンの最終チェックの段階のまで進むことができた。

実際に 1/1 スケールのナイロン溶着膜によるテストバルーンを製作し、水中投入テストなどの実践的な実験が行われている。

また、今回の選定までのプロセスは 1000kg の Xe を使う予定である第二段階において、新しくバルーンを製作する際の議論に対しても十分有効であると考えられる。

付録A テストバルーン

A.1 1/4スケールバルーンテスト (EVOH 15 μ m)

最初のテストバルーンにはこの時点で最も有望とされた EVOH を用いて 1/4 スケールのテストバルーンを作成した。ゴアの数は 8 枚である

目的

バルーンを実感。おおまかなバルーンの構造 (涙型など) を確認。15 μ m の薄さでバルーンができるのか確認。



図 A.1: 1/4 スケールバルーン (EVOH)

結果

バルーン自体は溶着部に目視の段階で穴があり、予定されていた水中テストは行えなかった。また、15 μ m の薄さの膜からバルーンを製作するのは難しいことが分かった。おおまかなバルーンの構

造を確認。バルーンの扱い方についての経験を得た。

A.2 1/4スケールバルーン水中テスト (ポリエチレン 80 μ m)

2つ目のテストバルーンはポリエチレンを使用して水中での膨張試験を行った。ポリエチレンでの製作のメリットは溶着方法が確立していることと丈夫な点である。前回のバルーンテストの結果からゴアのサイズを変更し、ゴアの数も8枚である。

目的

水投入時と水中でのバルーンの振る舞いを観察。ハンドリング (バルーンのたたみ方) の方法の確認。

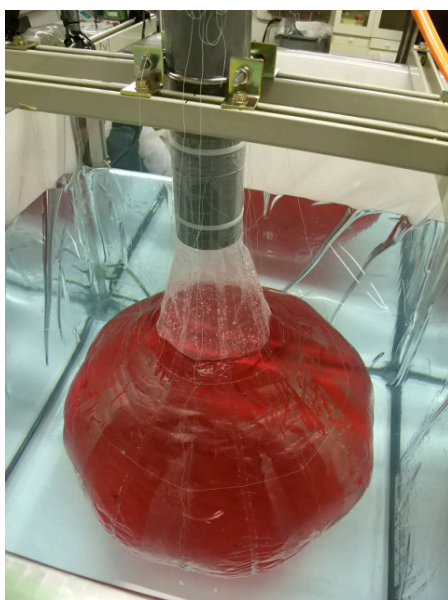


図 A.2: 1/4スケールバルーン (ポリエチレン)

結果

水中での膨らます過程でバルーン自体がねじれてしまう現象が起きたが、結果的には問題なくスムーズに膨らんだ。ただし、この実験には支障を与えない程度の微小な2箇所のリークがあった。また、ハンドリング (バルーンのたたみ方) もうまくいった (図 A.3 ゴアを星形に折り、丸める)。液体シンチレータの層作りも成功した。

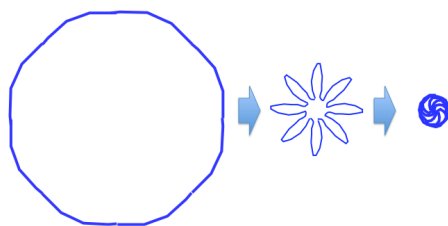


図 A.3: バルーンのたたみ方

A.3 1/1 スケールバルーンテスト (ポリエチレン 80 μ m)

青葉山体育館を使用して1/1スケールバルーン(ポリエチレン)の膨張試験を行った。ゴアの数
は12枚。

目的

実機サイズの実感する。ガイドロープの構造の確認。ノズル部分の観察。紐にかかる力の計測。



図 A.4: 1/1 スケールバルーン (ポリエチレン)

結果

上下が逆さではあるが、膜にかかる圧力などが本番と同じ条件でスムーズに膨らんだ。ガイドロープの張った様子も観察できた(12本のガイドロープにかかった総張力は7.1kg)。この結果から、ノズル側の半球にはガイドロープは不要であることが分かった。1/4スケールで確立したたたみ方はフルスケールでも有効であった。

A.4 1/1 スケールバルーン水中テスト (ポリエチレン 80 μ m)

アトックス社の千葉県柏市にある技術開発センター施設において、1/1 スケールのテストバルーン (直径 3.2m ポリエチレン 80 μ m) の水中への投入、膨張試験を行った。ゴアの数 は 12 枚。

目的

実機サイズの投入の手順や水中でも膨らむかの確認。

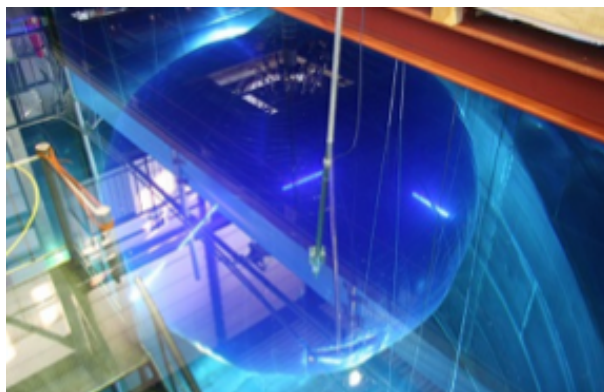


図 A.5: 1/1 スケールバルーン (ポリエチレン) at ATOX

結果

1/1 スケールのテストバルーンでも水中でスムーズに膨らませられることを確認できた。液体シンチレータのフルスケールでの水中での層作りのテストも行った。バネばかりを用いて、12本の紐には均等に力がかかっていることが分かった。

A.5 1/1 スケールバルーン水中テスト (ナイロン 25 μ m)

再びアトックス社の技術開発センターにて、KamLAND-Zen 実験の本番にも現在有力とされているクリーンナイロン膜 (25 μ m) を用いた 1/1 スケール (直径 3.2m) の水中テストを行った。紐にかかる力も本番と同様にロードセルを用いて計測した。また、バルーンの首の上部の管としてコルゲート管を用いた。ゴアの数 は 24 枚。

目的

投入、膨らませる試験のほかに、バルーン内での層作り、バルーンの引き抜きなど、KamLAND-Zen において実際に行う作業の確認。

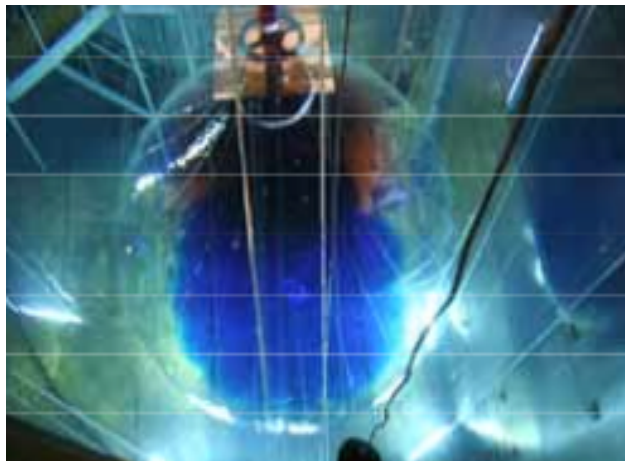


図 A.6: 1/1 スケールバルーン (ナイロン) at ATOX

結果

ガイドロープの横糸が切れてしまうというトラブルが発生したが、それ以外は無事に全ての試験を行うことに成功した。一度バルーンに満たした液体シンチレータは抜いて、もう一度膨らませる液体シンチレータの入れ替えを想定した実践的な実験も無事に行うことができた。

参考文献

- [1] 井上邦雄 日本物理学会秋季大会 2009
- [2] 白井淳平 KamLAND Collaboration Meeting, Sep. 3~6, 2010 @Amsterdam 2010
- [3] 永井成亮 東北大学大学院理学研究科修士論文 2009 年度
- [4] 高橋永 東北大学大学院理学研究科修士論文 2009 年度
- [5] 渡辺寛子 東北大学大学院理学研究科修士論文 2008 年度
- [6] BOREXINO HP <http://borex.lngs.infn.it/>
- [7] 藪本洋 東北大学理学部物理学科卒業研究発表資料 2008 年度
- [8] 浮島直樹 大阪市立大学院理学研究科修士論文 2006 年度
- [9] 池田重良 炎光・原子吸光分析 共立出版 1967
- [10] 定量分析化学 Jr. R.A. デイ、A.L. アンダーウッド、訳 鳥居泰男、康智三 培風館 1971
- [11] 新分析化学実験 日本分析化学会北海道支部 化学同人 1989
- [12] 試薬に学ぶ化学分析技術 関東化学株式会社 ダイアモンド社 2009