

# 修士論文

Xeを用いた二重ベータ崩壊実験のための  
集光ミラーと大光量液体シンチレータの開発

東北大学大学院理学研究科

物理学専攻

小畑 旭

平成24年度

## 概要

我々KamLAND-Zen グループは、 $^{136}\text{Xe}$ を用い、ニュートリノの放出を伴わない二重ベータ崩壊の探索を目指している。二重ベータ崩壊とは、通常のベータ崩壊がエネルギー準位的に禁止されている核種に起こりうる崩壊過程であり、原子番号が一つ大きい原子核の方が小さい結合エネルギーを持ち、かつ、原子番号がさらにもう一つ大きな原子核の方が大きい結合エネルギーを持つ場合のみ起こりうる。この二重ベータ崩壊には、二つの崩壊過程が考えられる。一方は、原子核中の2個の中性子が2つの電子と2つの陽子に変わり、2つの反電子ニュートリノを放出する反応 ( $2\nu$ モード) であり、これは10種類の同位体で確認されている。もう一方は、反電子ニュートリノの崩壊を伴わない反応 ( $0\nu$ モード) であり、この崩壊過程は2012年現在では未だに実験的に観測されていない。 $0\nu$ モードの観測に成功すれば、ニュートリノがマヨラナ粒子であることの証明となり、レプトジェネシスやレプトン数の非保存などの様々な謎の解明に繋がると期待されている。二重ベータ崩壊は極めて稀な反応で、その半減期も  $10^{21}\sim 10^{25}$  年以上と予想されるほど長い。さらに、崩壊エネルギーも数 MeV 程度と非常に小さく、観測が難しい。そのため、極低バックグラウンド環境かつ、高分解能という条件が必要となる。

KamLAND-Zen の次期フェイズでは、1,000kg の  $^{136}\text{Xe}$  を使うことにより、ニュートリノレス二重 $\beta$ 崩壊の観測と、ニュートリノの質量階層構造の検証を目指している。極低バックグラウンド環境を維持しても、Xe の  $2\nu\beta\beta$  崩壊のバックグラウンドを減らすことはできない。また、 $^{136}\text{Xe}$  による崩壊はシングルイベントであるため、コインシデンスを取ることができない。そのため、エネルギー分解能の向上は必須条件となる。そこで将来計画では、ミラーにより集光率を現在の1.8倍に向上させ、新しい液体シンチレータの開発により発光量を現在の1.5倍にすることで、エネルギー分解能を現在の0.6倍程度にまで引き上げることを目標としている。

本研究では、集光ミラーと新しい液体シンチレータの開発を行った。ミラーに関しては、360~450nm の光に対する反射率を、全入射角において85%以上にすることができれば、集光効率が最低でも1.5~1.7倍となることがわかった。これを踏まえて、反射率が高く、耐液性やコストの要求を満たす素材を選定した結果、PETにアルミを蒸着したものが良いという結論を得た。液体シンチレータに関しては、透過率を現在の液体シンチレータ以上に維持しながら、発光量を1.5倍にすることを目標に、素材の選定・性能評価を行った。結果、世界的によく利用されているLAB (リニアアルキルベンゼン) をベースに、PPO (2,5-ジフェニルオキサゾール) を溶かしたものが良いという結論を得た。LABは生成の過程で不純物が混じり、クエンチングや吸光を生じるため発光量や透過率の要求をそのままでは満たさないものの、蒸留や吸着剤によ

る純化で改善が可能であることがわかった。

集光ミラーの効果と、大光量液体シンチレータの開発により、今のところ最低でもおよそ 2.0 倍の集光量倍増が見込まれている。

# 目次

<b>第1章 はじめに</b>	<b>1</b>
1.1 ニュートリノ	1
1.2 太陽ニュートリノ問題	3
1.3 ニュートリノ振動	5
1.3.1 ニュートリノ振動の理論的予言	5
1.3.2 ニュートリノ振動の実験的証拠	7
1.4 ニュートリノレス二重 $\beta$ 崩壊探索	8
1.4.1 二重 $\beta$ 崩壊とは	8
1.4.2 二重 $\beta$ 崩壊の2つのモード	10
1.4.3 $0\nu$ 二重 $\beta$ 崩壊の探索意義と理論的背景	11
1.4.4 世界の二重 $\beta$ 崩壊実験	14
<b>第2章 KamLAND 実験</b>	<b>16</b>
2.1 実験の概要	16
2.2 装置の概要	17
2.2.1 KamLAND の構造	17
2.2.2 OD (外部検出器)	17
2.2.3 ID (内部検出器)	18
2.2.4 PMT とデータ収集システム	20
2.3 KamLAND 実験の成果	21
<b>第3章 KamLAND-Zen</b>	<b>23</b>
3.1 研究目的	23
3.2 検出器の構造	23
3.2.1 装置の概要と検出原理	23
3.3 KamLAND-Zen 実験の成果と現状	25
3.3.1 KKDC-claim の排除	25
3.3.2 KamLAND-Zen の現状	27
3.4 KamLAND-Zen の将来計画と本研究の研究動機	29

<b>第4章 集光ミラーの開発</b>	<b>31</b>
4.1 研究目的・目標	31
4.2 シミュレーション	32
4.3 反射率測定	35
4.3.1 測定装置	35
4.4 ミラー開発	39
4.4.1 ミラーへの要求と開発の手順	39
4.4.2 ミラーの選定	40
4.4.3 PET+Al ミラーの液中での反射率	43
4.4.4 PET+Al ミラーの化学的安定性	45
4.4.5 蒸着品の試作	48
<b>第5章 大光量液体シンチレータの開発</b>	<b>51</b>
5.1 研究目的・目標	51
5.2 液体シンチレータへの要求と素材の選定	51
5.3 リニアアルキルベンゼンの特性	53
5.4 純化の方法と減衰長の改善	54
5.4.1 蒸留の原理	54
5.4.2 減圧蒸留	56
5.4.3 吸着の原理	58
5.4.4 活性アルミナによる純化	58
5.4.5 透過率回復	59
5.5 発光量測定	61
5.5.1 発光量測定装置と解析方法	61
5.5.2 発光量の測定結果	63
5.5.3 純化による発光量回復	64
5.6 ガスクロマトグラフ測定	65
5.6.1 GCによる不純物質の調査結果	65
5.6.2 他の研究グループによるGC調査の結果	70
5.7 デカンの混合比依存性	73
5.7.1 デカンの混合による発光量変化	73
5.7.2 密度変化	74
5.8 屈折率測定	76

第 6 章 結論と今後の課題	78
付録 Arrhenius の法則 . . . . .	79

# 目次

1.1	pp-chain . . . . .	3
1.2	pp-chain . . . . .	4
1.3	$^{136}\text{Xe}$ の $\beta\beta$ 崩壊 . . . . .	8
1.4	二重 $\beta$ 崩壊の 2 つのモード . . . . .	10
1.5	エネルギー分布 . . . . .	11
1.6	ニュートリノの質量階層構造 . . . . .	13
2.1	KamLAND の位置 . . . . .	16
2.2	KamLAND 検出器の構造 . . . . .	18
2.3	17" PMT と 20" PMT の構造 . . . . .	20
2.4	原子炉ニュートリノのニュートリノ振動 . . . . .	21
2.5	KamLAND による地球ニュートリノの検出 . . . . .	22
3.1	KamLAND-Zen の構造 . . . . .	23
3.2	KKDC-claim の排除 . . . . .	26
3.3	KamLAND-Zen の予想されるエネルギー分布 . . . . .	27
3.4	質量階層構造とニュートリノ有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ . . . . .	28
3.5	KamLAND2-Zen . . . . .	29
3.6	KamLAND2-Zen の $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ に対する予測感度 . . . . .	30
4.1	17" と 20" の PMT 用のコーンの完成予想図 . . . . .	31
4.2	Winston-Cone 型の形の決定方法 . . . . .	32
4.3	仮定したミラーの形状 (17" PMT 用) . . . . .	33
4.4	仮定したミラーの形状 (20" PMT 用) . . . . .	33
4.5	ミラー有無での集光量の比較 . . . . .	34
4.6	反射率測定装置 . . . . .	35
4.7	反射率測定のロジック . . . . .	36
4.8	反射率測定 (Voltage のデータ) . . . . .	37
4.9	反射率測定の安定性 (2 時間測定) . . . . .	37
4.10	自作した液中での反射率測定用持具 . . . . .	38

4.11	反射率測定用持具の窓の個性 . . . . .	39
4.12	波長に対する、金・銀・銅・アルミの反射率 [21] . . . . .	40
4.13	アクリミラーとメタルミの構造 . . . . .	41
4.14	アクリミラーとメタルミの空気中における反射率 . . . . .	42
4.15	メタルミのパラフィン中における反射率 . . . . .	43
4.16	メタルミの LAB 中における反射率 . . . . .	44
4.17	アルミの空気中における反射率の角度依存性 . . . . .	45
4.18	アルミのパラフィン中における反射率の角度依存性 . . . . .	45
4.19	メタルミの反射率 . . . . .	46
4.20	つけ込み後の反射率 . . . . .	46
4.21	パラフィンオイルの透過率/9cm . . . . .	47
4.22	つけ込み後の透過率/9cm . . . . .	47
4.23	蒸着器 . . . . .	48
4.24	1/3 サイズの平面ミラーのサンプル . . . . .	48
4.25	蒸着サンプルの空気中における反射率 . . . . .	49
4.26	フルスケールミラーの試作 . . . . .	50
5.1	SNO+の測定による LS の発光量 [4] . . . . .	53
5.2	LAB の構造式 . . . . .	54
5.3	理想混合物の温度-組成曲線 [22] . . . . .	55
5.4	蒸留装置のセットアップ . . . . .	56
5.5	蒸留中の温度 . . . . .	57
5.6	活性アルミナによる吸着装置 . . . . .	59
5.7	純化前後の LAB の 9cm に対する透過率 . . . . .	60
5.8	純化前後の吸光率 . . . . .	60
5.9	発光量測定のリジック . . . . .	61
5.10	発光量測定 of 解析 . . . . .	62
5.11	TDC 型ガスクロマトグラフの装置 . . . . .	65
5.12	アルケン L の GC 測定 . . . . .	66
5.13	DB の GC 測定 (吸着前) . . . . .	67
5.14	DB の GC 測定 (吸着後) . . . . .	68
5.15	アルケン L の GC-MS 分析結果 . . . . .	69
5.16	LAB の透過率測定 . . . . .	71
5.17	GC による比較 . . . . .	71
5.18	予想される不純物質の構造式 . . . . .	72



5.19 LAB 液体シンチレータの発光量のデカン混合比依存性 . . . . .	74
5.20 LAB の密度のデカン混合比依存性 . . . . .	75
5.21 LAB の屈折率の波長依存性 . . . . .	77

# 第1章 はじめに

## 1.1 ニュートリノ

不安定な原子核は、放射線を放出して安定な他の状態へと崩壊する。原子核の崩壊には、 $\alpha$ 崩壊、 $\beta$ 崩壊、 $\gamma$ 崩壊の3種類があり、そのときに放出される放射線のエネルギーは、崩壊前後のエネルギー差に等しい。 $\alpha$ 崩壊はヘリウムの原子核を放出する過程で、核種によって $\alpha$ 線のエネルギーは一定である。 $\gamma$ 崩壊は、 $\alpha$ 崩壊や $\beta$ 崩壊の後、不安定な核種が放射性崩壊する過程で、 $\gamma$ 線のエネルギーも、核種によって決まった値を取る。 $\beta$ 崩壊は、中性子過剰な核が起こしやすく、原子核内の中性子が崩壊して陽子と電子に分かれる反応である。 $\beta$ 崩壊後は原子番号が一つ増え、電子線 ( $\beta$ 線) が放出される。1920年頃、 $\beta$ 崩壊は以下のような式で表されると考えられていた。



この反応は2体崩壊であるため、 $\beta$ 線のエネルギーは単一になると思われていた。しかし、1924年、J.Chadwickは $\beta$ 線のエネルギーが連続分布することを発見した。電子のエネルギーが連続スペクトルである場合、上記の式では反応の前後でエネルギー保存則が破れてしまう。また、フェルミ粒子である電子の角運動量は $h/2\pi$ の半整数倍の値しか取り得ないため、反応の前後で角運動量の保存も破れてしまう。1930年、Pauliはこの問題を解決するため新粒子の存在を仮定し、 $\beta$ 崩壊の式として、以下の式を提唱した。



この粒子は $h/2\pi$ の角運動量を持ち、かつ、電氣的に中性である必要がある。当時、中性を表す言葉は中性子 (neutron) に使われてしまっていたため、それに微小なという意味の言葉 (rino) を加え、この粒子をニュートリノ (neutrino) と命名した。ただし、この式では厳密には正しくなく、レプトン数を保存させるには、



と書く必要がある。ニュートリノの存在を初めて実験的に証明したのは、F.Reines と C.L.Cowan である。彼らは 1956 年、原子炉の  $\beta$  崩壊から放射される反電子ニュートリノを二塩化カドミウムを溶かした水の陽子に当てた。陽子と反電子ニュートリノが反応すると、逆  $\beta$  崩壊という過程を経て、熱中性子と陽電子が放出される。彼らはこの二つの信号を同時に検出することに成功した。この実験から、ニュートリノの存在が証明された。このように、Pauli の予言からニュートリノの実験的観測に至るまで長い時間がかかった。これは、ニュートリノが電氣的に中性で、強い相互作用では反応せず、また、質量も極めて軽いという性質を持つことに由来する。ニュートリノは弱い相互作用でしか反応せず、物質と反応しづらいため、検出が困難なのである。物質を構成する素粒子はクォークとレプトンに分けられる。クォークもレプトンもスピン  $1/2$  を持つフェルミ粒子であり、それぞれが 3 世代存在していて、更にその反粒子が存在する (表 1.1)。ニュートリノにもレプトンに対をなす 3 世代があり、ミュー型ニュートリノは 1962 年に Brookhaven 国立研究所で、タウ型ニュートリノは 2000 年に DONUT 実験で観測されている。

	電荷	第 1 世代	第 2 世代	第 3 世代
クォーク	+2/3	u	c	t
	-1/3	d	s	b
レプトン	-1	e	$\mu$	$\tau$
	0	$\nu_e$	$\nu_\mu$	$\nu_\tau$

表 1.1: クォークとレプトン

## 1.2 太陽ニュートリノ問題

太陽のように自ら光り輝く恒星は、膨大なエネルギーは放出し続けている。1920年、エディントン (Sir.Arthur Stanley Eddington) は、恒星のエネルギー源が水素からヘリウムへの核融合によるものであるということをはじめて示唆した。その後、R.Alpher や G.Gamow、H.A.Bethe による  $\alpha \beta \gamma$  理論などによって恒星進化論が完成していった。恒星内部では、陽子4つが融合してヘリウムになり、電子ニュートリノが生み出されるような核融合反応が起きており、この反応でエネルギーを生み出している。



ただし、この式はいくつかの反応をまとめたものであり、実際は複雑な反応過程が連鎖的に起きていると考えられている。それらは、ppチェーンと呼ばれる過程 (図 1.1) と CNO サイクルと呼ばれる過程 (図 1.2) の2種類がある

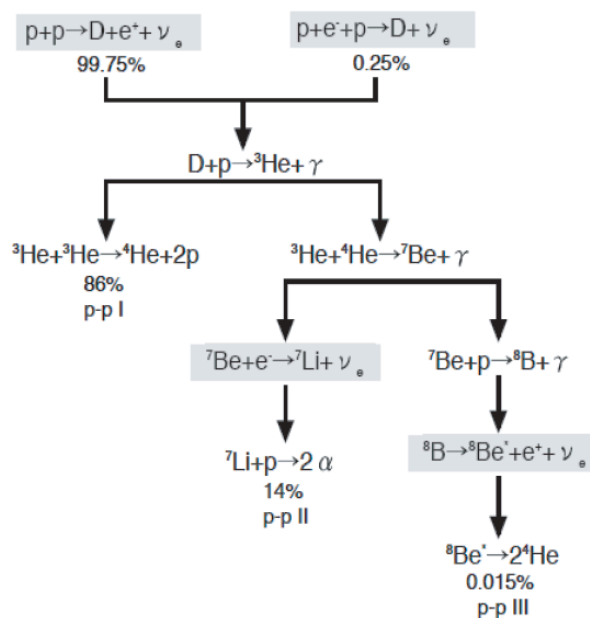


図 1.1: pp-chain

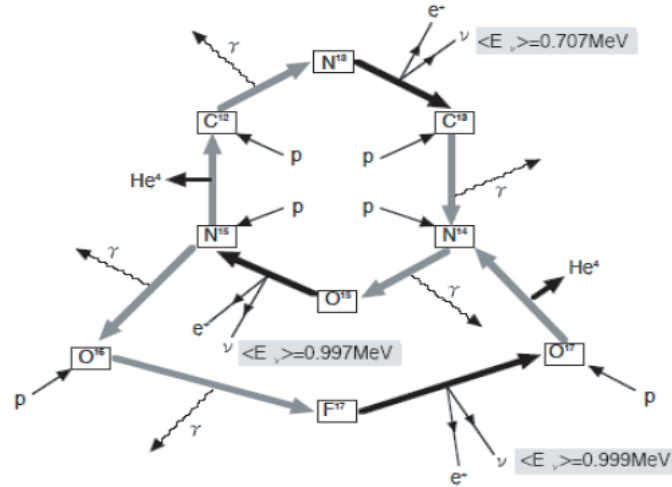


図 1.2: pp-chain

太陽ニュートリノの観測を始めに行ったのは、デイビス (R.Davis Jr) を始めとする研究グループであった。彼らは  $C_2Cl_4$  を太陽ニュートリノに晒し、その反応数をカウントした。利用したのは、以下の反応である。



この時の軌道電子捕獲で放出される X 線とオーグエ電子のイベント数をカウントすることで、捕獲したニュートリノの数が計測できる。彼らは 1970 年から 1994 年までデータを取り続け、その崩壊の数は、 $2.54 \pm 0.14$  (stat.)  $\pm 0.14$  (sys.) [SNU] となった。バコールやピンソノルトの標準太陽模型の計算によれば、理論で予想される  $^{37}Cl$  の捕獲率は 9.3SNU であるから、太陽ニュートリノ数が理論による予測値の 1/3 以下であるということになってしまう。この問題は太陽ニュートリノ問題と呼ばれた。この問題は、素粒子実験に馴染みのない化学的手法に基づいていたため、別の手法のニュートリノ観測実験が強く望まれた。1983 年、岐阜県吉城郡神岡町にある神岡鉱山の地下 1,000m に 3,000 トンの超純水を用いた水チェレンコフ光検出器 (カミオカンデ) が完成し、 $^8B$  起源のニュートリノを観測した。彼らは、2001 年 7 月まで

の 1,497 日分のデータを解析し、以下の結果を出した [2]。

$$\phi = (2.35 \pm 0.02(\text{stat.}) \pm 0.08(\text{sys.})) \times 10^6 [\text{cm}^2/\text{s}] \quad (1.6)$$

標準太陽模型 (SSM) の計算では、 $\phi = 6.62 \times 10^6 [\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}]$  であるので、観測地は予想値の 42 % となり、太陽ニュートリノがやはり少ない。他にも、太陽ニュートリノの捕獲を試みたグループがある。イタリアの GALLEX とロシアの SAGE では、ガリウムと電子ニュートリノの反応である、



を利用して太陽ニュートリノの観測を試みた。GALLEX の結果も、予測値の約 60 % [2] で、SAGE の結果も同様に太陽ニュートリノの捕獲数が足りないというものであった。このように世界中で標準太陽も径の予言する値よりも、太陽ニュートリノの数が少ないという結果になった。模型の補正や実験結果の正しさを見直すなど、様々な努力もあったが、この問題はニュートリノ振動によって説明できるという形で決着がついた。

## 1.3 ニュートリノ振動

### 1.3.1 ニュートリノ振動の理論的予言

標準理論によれば、3 種類のニュートリノの質量は 0 であるとされているが、もしニュートリノに質量があると仮定した場合、ニュートリノ振動と呼ばれる現象が起こりうる。ニュートリノは、弱い相互作用で荷電レプトンと対を為す形で生成される。ニュートリノに質量がある場合、ニュートリノのフレーバーの固有状態は、質量固有状態の重ね合わせになる。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_j U_{\alpha j} |\nu_j\rangle \quad (1.8)$$

ニュートリノの質量固有状態は、それぞれが別々の時間発展をするため、以下のよう書ける。

$$|\nu_\alpha(t)\rangle = \sum_j U_{\alpha j} |\nu_j\rangle e^{-iE_j t} \quad (1.9)$$

$$E_j = \sqrt{p^2 + m_j^2} \simeq p + \frac{m_j^2}{2p} \quad (1.10)$$

ニュートリノは本体3世代あるが、ここでは簡単のため2世代での混合を考える。フレーバーを  $\nu_e$  と  $\nu_\mu$  とし、質量固有状態を  $\nu_1$  と  $\nu_2$  とする。それぞれのフレーバー固有状態を式に表すと、以下のようになる。

$$|\nu_e\rangle = \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta |\nu_2\rangle \quad (1.11)$$

$$|\nu_\mu\rangle = -\sin\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle \quad (1.12)$$

$$(1.13)$$

従って、この式から  $\nu_e$  が  $\nu_\mu$  に変化する確率は、ブラケットで内積を取って二乗すればよいから、以下のようになる。

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu, t) \quad (1.14)$$

$$= |\langle \nu_e(0) | \nu_\mu(t) \rangle|^2 \quad (1.15)$$

$$= \left| \sin\theta \cos\theta (1 - e^{-i(E_1 - E_2)t}) \right| \quad (1.16)$$

$$\simeq \sin^2 2\theta \sin^2 \left( \frac{\Delta m^2}{4E} L \right) \quad (1.17)$$

$$= \sin^2 2\theta \sin^2 \left( 1.27 \frac{\Delta m^2 [eV^2]}{E [GeV]} L [km] \right) \quad (1.18)$$

このように、2世代での質量状態が混合していれば、ニュートリノが別の種類のニュートリノに振動することが可能であることがわかる。太陽ニュートリノ問題は、このニュートリノ振動で説明ができる。また、実際のニュートリノは3世代あるので、3つのニュートリノ振動が存在する。3種類のニュートリノ振動があるとき、その固有質量の混合はMNS行列（牧-中川-坂田行列）で表される。なお、この式の前項は定数であり、決まった値を取る。一方で、後ろの項はニュートリノのエネルギーと飛距離に依存して振動しているため、 $\sin^2(\frac{\Delta m^2}{4E}L) \sim \pi/2$ となる時、ニュートリノのフレーバーの変化が顕著になる。ニュートリノ実験を考えると、L/Eの値を適切に選べば、 $\Delta m^2$  や  $\theta$  の値を調べることができる。

$$U = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{-i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{-i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.19)$$

### 1.3.2 ニュートリノ振動の実験的証拠

最初にニュートリノ振動の証拠を初めて実験的に示したのは、スーパーカミオカンデ (SK) である。2002 年、彼らは大気ニュートリノの観測から  $\nu_\mu$  と  $\nu_\tau$  間の振動を発見した。

陽子や原子核などの宇宙線が、地球の大気層で酸素や窒素の原子核と相互作用すると、 $\pi$  中間子や K 中間子などが作られる。それらの中間子は不安定で、電子と  $\nu_e$  と  $\nu_\mu$  に崩壊する。SK は方向検出と  $\nu_e$  と  $\nu_\mu$  の分別が可能であり、ニュートリノ振動がないとすると、1GeV 以下のニュートリノに対しては、天頂角分布が  $\nu_e:\nu_\mu = 2:1$  に、1GeV 以上では対称になるはずであった。SK が 15,000 イベントの大気ニュートリノを解析したところ、 $\nu_e$  は角度分布・イベント数ともに期待通りであったが、高エネルギー側の  $\nu_\mu$  の天頂角分布が対称になっていないという結果になった。上空から飛来する  $\nu_\mu$  に対し、地球の裏側から飛来するものの数が半分程度になっていたのである。このことで、SK は大気ニュートリノの振動の証拠を示すとともに、標準理論を超えた証拠を発見することとなった。また、この結果を考察することで、混合角  $\theta_{23}$  と  $\Delta m_{23}^2$  に制限がつけられ、

$$\sin^2 2\theta_{23} = 0.92 - 1.00 \quad (1.20)$$

$$\Delta m_{23}^2 = (1.6 - 3.9) \times 10^{-3} [eV^2] \quad (1.21)$$

が得られた [1]。

この発見以来、3 世代間のニュートリノの混合角と質量二乗差を求める実験が世界中で行われている。また、我々 KamLAND グループも反電子ニュートリノのニュートリノ振動を非常に高い信頼度で実験的に証明したが、それに関しては KamLAND の章で詳しく書くこととする。



## 1.4 ニュートリノレス二重 $\beta$ 崩壊探索

前節までは、ニュートリノの歴史や性質について述べてきた。ニュートリノを伴わない二重 $\beta$ 崩壊の観測は、ニュートリノの質量構造やマヨラナ性といったニュートリノの性質に深く関わってくる。本節では、本研究のテーマである二重 $\beta$ 崩壊と、その観測意義について述べる。

### 1.4.1 二重 $\beta$ 崩壊とは

二重 $\beta$ 崩壊とは、原子核内で2つの中性子が同時に $\beta$ 崩壊する極めて稀な現象である。二重 $\beta$ 崩壊は、通常の $\beta$ 崩壊がエネルギー的に禁止されており、かつ、二回 $\beta$ 崩壊後の原子核の結合エネルギーが大きい場合にのみ起こりうる。ここでは例として、本実験でも使われている $^{136}\text{Xe}$ を挙げた(図 1.3)。

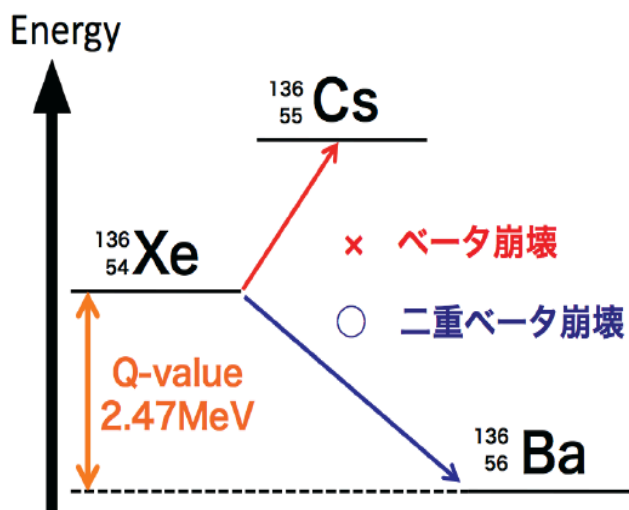


図 1.3:  $^{136}\text{Xe}$  の  $\beta\beta$  崩壊

Nucleas	$T_{1/2}^{0\nu}(50meV)$	$T_{1/2}^{2\nu}$ measured(year)	Nat Abundance(%)	Q-value
$^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{48}\text{Ti}$		$(4.2^{+2.1}_{-1.0}) \times 10^{19}$	0.19	4271
$^{76}\text{Ge} \rightarrow ^{76}\text{Se}$	$0.86 \times 10^{27}$	$(1.5 \pm 0.1) \times 10^{21}$	7.8	2039
$^{82}\text{Se} \rightarrow ^{82}\text{Kr}$	$2.44 \times 10^{26}$	$(0.92 \pm 0.07) \times 10^{20}$	79.2	2995
$^{96}\text{Zr} \rightarrow ^{96}\text{Mo}$	$0.98 \times 10^{27}$	$(2.0 \pm 0.3) \times 10^{19}$	2.8	3351
$^{100}\text{Mo} \rightarrow ^{100}\text{Ru}$	$2.37 \times 10^{26}$	$(7.1 \pm 0.4) \times 10^{18}$	9.6	3034
$^{116}\text{Cd} \rightarrow ^{116}\text{Sn}$	$2.86 \times 10^{26}$	$(3.0 \pm 0.2) \times 10^{19}$	7.5	2805
$^{128}\text{Te} \rightarrow ^{128}\text{Xe}$	$4.53 \times 10^{27}$	$(2.5 \pm 0.3) \times 10^{24}$	31.7	867
$^{130}\text{Te} \rightarrow ^{130}\text{Xe}$	$2.16 \times 10^{26}$	$(0.9 \pm 0.1) \times 10^{21}$	34.5	2529
$^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{136}\text{Ba}$	$4.55 \times 10^{26}$	$(2.11 \pm 0.25) \times 10^{21}$	8.9	2476
$^{150}\text{Nd} \rightarrow ^{150}\text{Sm}$	$2.23 \times 10^{25}$	$(7.8 \pm 0.6) \times 10^{18}$	5.6	3367

表 1.2: 二重 $\beta$ 崩壊を起こす核種

古典論においては $\beta$ 崩壊が完全に禁止されているため、 $^{136}\text{Xe}$ において二重 $\beta$ 崩壊は起こりえない。しかし、量子力学によれば、ある物質のエネルギー変化を $\Delta E$ 、そのエネルギー変化に必要な時間を $\Delta t$ とおくと、この二つの物理量には以下のような不確定性が存在する。

$$\Delta E \Delta t \simeq \hbar \quad (1.22)$$

古典論では禁止されている $\beta$ 崩壊は、この揺らぎによって非常に短い時間であれば起こりうると考えられる。したがって、 $^{136}\text{Xe}$ が $^{136}\text{Ba}$ へと崩壊する二重 $\beta$ 崩壊が起こる確率が存在する。二重 $\beta$ 崩壊を起こす原子核は極めて少なく、その半減期も非常に長い、66種の原子核で可能であると考えられている。2013年1月現在で10個の原子核が二重 $\beta$ 崩壊を起こす原子核として確認されている(表 1.2)。

### 1.4.2 二重β崩壊の2つのモード

二重β崩壊には2つのモードが考えられる。二重β崩壊とは同時に二回β崩壊が起きる反応であるが、このとき、原子番号は二つ増え、2個の電子と2個の反電子ニュートリノが放出されるはずである。しかし、ニュートリノがマヨラナであるとする、ニュートリノの放出を伴わないモードも考えられる。これを二重β崩壊の0νモードと呼ぶ(図1.4)。

$$2\nu: (A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2e^- + 2\bar{\nu}_e \quad (1.23)$$

$$0\nu: (A, Z) \rightarrow (A, Z + 2) + 2e^- \quad (1.24)$$

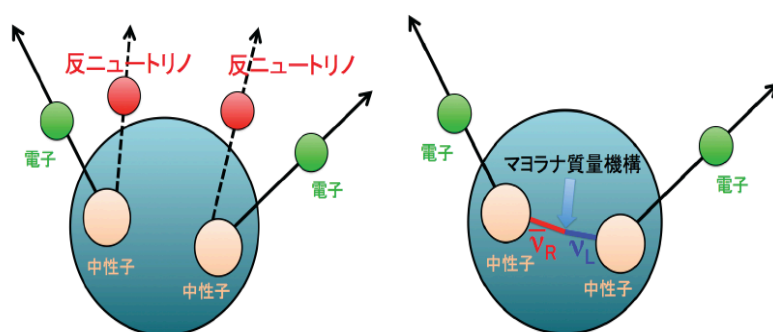


図 1.4: 二重β崩壊の2つのモード

2νモードの崩壊では、通常のβ崩壊が二回起こるだけなので、原子番号が2つ増え、エネルギーの一部をニュートリノが持ち出すため、飛び出す電子のエネルギーは連続スペクトルになる。一方、0νモードでの崩壊の場合、原子番号は2つ増えるが、ニュートリノはもう一つの中性子かニュートリノに吸収される。しかしながら、この0νモードは標準模型では禁止されている。また、飛び出す電子のエネルギー分布も線スペクトルになると考えられる(図1.5)。0νの観測には、この線スペクトルの検出が必須となる。

この線スペクトルが検出が検出されれば、ニュートリノがマヨラナ粒子であることの直接的な証拠となり、ニュートリノの質量が計算できる。しかし、実際の実験では、検出器の原理上、分解能というものがあるため、線スペクトルにはならない。また、どのような検出器を用いたとしても、他の粒子線が落とす信号がバックグラウンドになるため、シングルイベントである二重β崩壊を検出することが難しい。

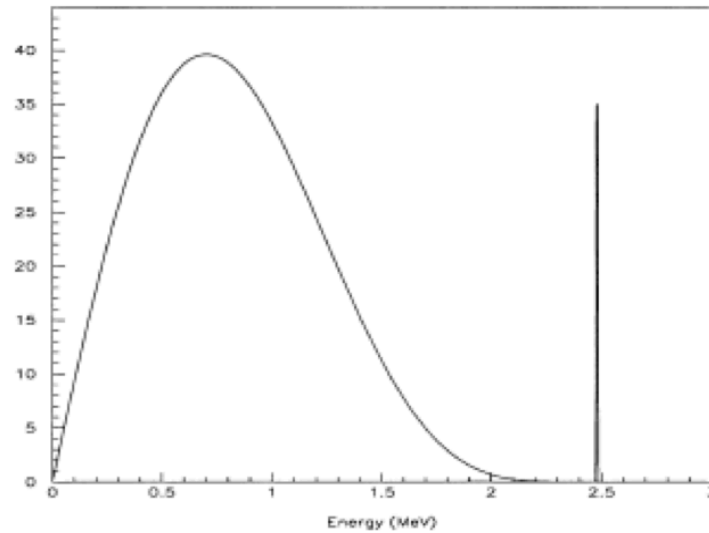


図 1.5: エネルギー分布

### 1.4.3 $0\nu$ 二重 $\beta$ 崩壊の探索意義と理論的背景

$0\nu$ モードの探索には、様々な理論的背景が存在する。解明されると期待されている謎と、研究の背景となる要素を以下に示した。

- (i) レプトジェネシス
- (ii) シーソー機構
- (iii)  $0\nu$ モードの観測意義

(i) 現在の宇宙は物質優勢であるが、そのためには、バリオン非対称性を生成する過程が必要である。レプトジェネシスとは、宇宙のバリオン数非保存をニュートリノの性質から説明する機構である。宇宙創成初期、非常に重い質量を持つ右巻きのニュートリノが存在していたとすると、その崩壊によってレプトンと反レプトンが生成される。この過程が非平衡の反応であれば、レプトン非保存が生じる。今日、この宇宙が正バリオン優勢であることの原因を、ニュートリノの性質で説明できる可能性がある。このレプトジェネシスによる過程を証明し、現在の宇宙の状態と照合するためには、ニュートリノの質量や性質を調べる必要がある。

(ii) シーソー機構とは、現在のニュートリノが左巻きしか存在せず、右巻きのニュートリノが存在しない理由を、ニュートリノの質量から説明する方法の一つである。簡単のため、 $m_L = 0$ として、タイプ1と呼ばれるシーソー機構について説明する。ま

ず、ラグランジアンに Dirac 質量項と、正のカイラル質量項を加えると、以下のような式が書ける。

$$-\mathcal{L}_{D+R} = \frac{1}{2}(\mathcal{N}_L)^c M \mathcal{N}_L + h.c. \quad (1.25)$$

ここで、質量行列  $M$  と負のカイラルベクトル  $\mathcal{N}_L$  は以下のように表される。

$$M = \begin{pmatrix} 0 & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

$$\mathcal{N}_L = \begin{pmatrix} \nu_L \\ (\nu_R)^C \end{pmatrix} \quad (1.27)$$

この質量行列  $M$  を対角化すると、

$$U^T M U = \begin{pmatrix} m_1 & 0 \\ 0 & m_2 \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

となり、この式の  $m_1$  と  $m_2$  の固有値はそれぞれ、

$$m_1 \simeq \frac{m_D^2}{m_R} \quad (1.29)$$

$$m_2 \simeq m_R \quad (1.30)$$

となる。ここで、 $m_R$  が  $m_D$  に対して大きくなると、 $m_1$  の値は非常に小さくなることから、シーソー機構と呼ばれる。

(iii) 二重  $\beta$  崩壊の  $0\nu$  モードが起こるためには、ニュートリノに必要な条件がいくつか存在する。

(1) ニュートリノがマヨラナ粒子であること

ニュートリノに粒子反粒子の区別があるとすると、片方の中性子から飛び出したニュートリノが、もう一方の中性子に吸収されることはない。したがって、ニュートリノがマヨラナ粒子であることが必要となる。ニュートリノは質量を持ち、電氣的に中性であるので、マヨラナ粒子である可能性がある。

(2) ニュートリノが質量を持ち、ヘリシティ混合があること

$\beta$  崩壊により飛び出すニュートリノは、進行方向に対して左巻きである（ヘリシティが-1である）。もし、ニュートリノの質量が0であるとすると、ニュートリノは常に光

速で運動することになり、ヘリシティの混合はない。その場合、二重 $\beta$ 崩壊では左巻きのみのニュートリノと右巻きのみの反ニュートリノでは反応せず、0 $\nu$ モードは起こらない。ニュートリノ振動の結果から、ニュートリノには質量があることが分かっているので、ニュートリノは光よりわずかに遅く運動することになる。左巻きの成分だけでなく、少しでも右巻きの成分も持てば、ヘリシティの混合ができ、0 $\nu$ モードの二重 $\beta$ 崩壊が起こりえる。

このことから、0 $\nu$ モードの観測が成功すれば、ニュートリノがマヨラナ粒子であることの証拠となる。なお、0 $\nu$ モードの半減期とニュートリノ質量の半減期には密接な関係があり、以下の式で表される。

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \langle m_\nu^2 \rangle \quad (1.31)$$

このことから、0 $\nu$ モードの半減期を求めることで、ニュートリノの有効質量に制限をつけることができる。また、ニュートリノの質量二乗差には制限が加えられているものの、3つのフレーバーの質量の絶対値の大きさの順はまだ解明されていない(図1.6)。ニュートリノの有効質量に制限をつけることで、ニュートリノの質量階層構造を解明することも可能であると考えられる。

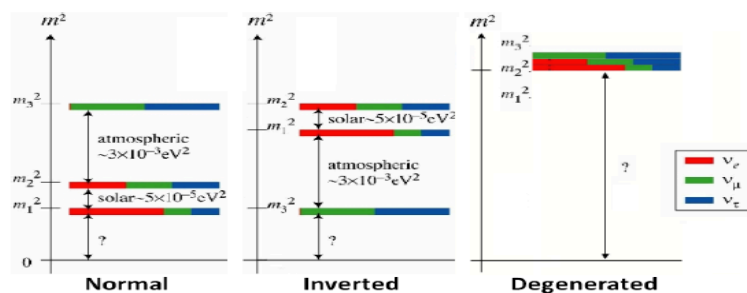


図 1.6: ニュートリノの質量階層構造

#### 1.4.4 世界の二重 $\beta$ 崩壊実験

パウリの予言以降、世界中でニュートリノ実験は数多く実施されてきた。太陽ニュートリノ問題を提起したデイビスの実験は有名である。太陽ニュートリノ問題や大気ニュートリノでは、スーパーカミオカンデ実験やSNO実験などの結果を照らし合わせることで、原因がニュートリノ振動ということで決着した。このように、優れた一つの実験だけで結果を出すのではなく、多数の実験が別のアプローチで競争・協力し合って一つの物理量を求めていくことは、非常に重要である。3世代の質量二乗差と混合角も同様であり、例えば、DoubleChoozやT2K実験などが $\theta_{13}$ の有限値を求める実験として挙げられる。我々KamLAND-Zenグループは、 $^{136}\text{Xe}$ とシンチレータ検出器を用いて0 $\nu$ モードの二重 $\beta$ 崩壊を探索しているが、他の核子やアプローチで0 $\nu$ モードの探索を行っているグループもある。ここでは、0 $\nu$ モード探索実験のタイプ別に、それぞれの特徴を述べる。

##### ・シンチレータ

KamLAND-ZenやEXO-200、SNO+などはシンチレータを使った0 $\nu$ モードの検出を試みている。この方法では、シンチレータに二重 $\beta$ 崩壊核を溶かし、 $\beta$ 崩壊により飛び出す電子を発光イベントとして検出する。シンチレーション光が放射状に放射されるという性質上、方向検出が難しいという欠点がある反面、純化により低BGを実現できる利点がある。また、低エネルギーのイベントを見ることにも適している。

##### ・高Q値

検出手法が同じでも、別の二重 $\beta$ 崩壊核を用いて実験しているグループもある。例えば、CANDLESは $^{48}\text{Ca}$ を用いたシンチレータ型の検出器であるが、 $^{48}\text{Ca}$ が $^{48}\text{Ti}$ に二重 $\beta$ 崩壊するときのQ値は、4271MeVと非常に大きい。二重 $\beta$ 崩壊の寿命はQ値の5乗に反比例するため、Q値が高いことは二重 $\beta$ 崩壊が頻繁に起こる核種ということになる。

##### ・トラッキング

Nemo3やDCBAなどが採用している方法は、トラッキングという方法である。トラッキングとは、信号読み出し用のワイヤーを張った検出器内部をガスで満たし、中に様な磁場をかけることで、磁場中を螺旋運動する荷電粒子の運動量とエネルギーを測定する方法である。この方法では、荷電粒子の軌跡から、二重 $\beta$ 崩壊のイベントと、 $\gamma$ 線によるコンプトン散乱や $\alpha$ 線などのBGとを区別することができる。光に対して感度がないため、 $\gamma$ 線やX線がBGにならないという利点がある。

・高分解能

CUORE や GERDA のように、高い分解能を持つ検出器で、他の BG と  $0\nu$  二重  $\beta$  崩壊を区別する方法も考案されている。CUORE では、ボロメータを用いて  $^{130}\text{Te}$  の二重  $\beta$  崩壊による信号を測定する。ターゲットとなる  $\text{TeO}_2$  結晶自体を冷却器で囲い、温度上昇を電気信号として取り出すことで非常に高いエネルギー分解能を持つ。また、GERDA 実験のように放射線検出器としては最高のエネルギー分解能を持つゲルマニウム検出器を制作し、高分解能の装置で実験を行う計画もある。この実験でも、 $^{76}\text{Ge}$  自体が検出器としても、二重  $\beta$  崩壊核としても機能する。

また、これまで行われてきた  $0\nu$  モードの探索実験と、計画中の実験の目標値を示す [12]。

Experiment	Isotope	$T_{1/2}^{0\nu}$ (target sensitivity)	$ m_{\beta\beta} $ (eV)	Technique
Heidelberg-Moscow	$^{76}\text{Ge}$	$> 1.9 \times 10^{25}$	$< 0.35$	ionization
Klapdor et. al.	$^{76}\text{Ge}$	$2.23 \times 10^{25}$	$< .32 \pm 0.03$	ionization
IGEX	$^{76}\text{Ge}$	$> 2.23 \times 10^{25}$	0.33 – 1.35	ionization
DAMA	$^{136}\text{Xe}$	$> 1.2 \times 10^{24}$	1.1 – 2.9	scintillator
Nemo3	$^{100}\text{Mo}$ $^{82}\text{Se}, \text{etc.}$	$> 5.8 \times 10^{23}$ $> 2.1 \times 10^{21}$	$< 0.6 - 1.3$ $< 1.2 - 2.2$	tracking
CUORICINO	$^{130}\text{Te}$	$> 2.23 \times 10^{25}$	0.33 – 1.35	ionization
EXO-200,1000	$^{136}\text{Xe}$		0.15 $\rightarrow$ 0.04	tracking
KamLAND-Zen	$^{136}\text{Xe}$	$> 1.14 \times 10^{24}$	0.06 $\rightarrow$ 0.025	scintillator

表 1.3: 現在までに行われてきた  $0\nu$  探索実験

Experiment	Isotope	$ m_{\beta\beta} $ (eV)	Technique
GERDA 2	$^{76}\text{Ge}$	$< 0.11$	ionization
MAJORANA	$^{76}\text{Ge}$	0.1	ionization
CUORE	$^{130}\text{Te}$	0.047 – 0.053	bolometric
Super NEMO	$^{100}\text{Mo}, ^{82}\text{Se}, \text{etc.}$	0.04 – 0.14	tracking
DCBA-T2,T3	$^{150}\text{Nd}$	?	tracking
NEXT-100	$^{136}\text{Xe}$	0.1	tracking
SNO+	$^{150}\text{Nd}$	0.1 $\rightarrow$ 0.04	scintillator
CANDLES	$^{48}\text{Ca}$	0.4	scintillator

表 1.4: 現在計画されている  $0\nu$  探索の将来実験



## 第2章 KamLAND 実験

### 2.1 実験の概要

KamLAND (Kamioka Liquid scintillator ANti-Neutrino Detector) は、カミオカンデの跡地に作られたニュートリノ観測装置である (図 2.1)。地下 1,000m に位置するため、宇宙線ミュオンのレートが地上のおよそ 10 万分の 1 となる。このため、宇宙線起源のバックグラウンドが非常に少ない。KamLAND 実験では、1,000 トンの液体シンチレータによるシンチレーション光を光電子増倍管で検出し、反電子ニュートリノを観測する。

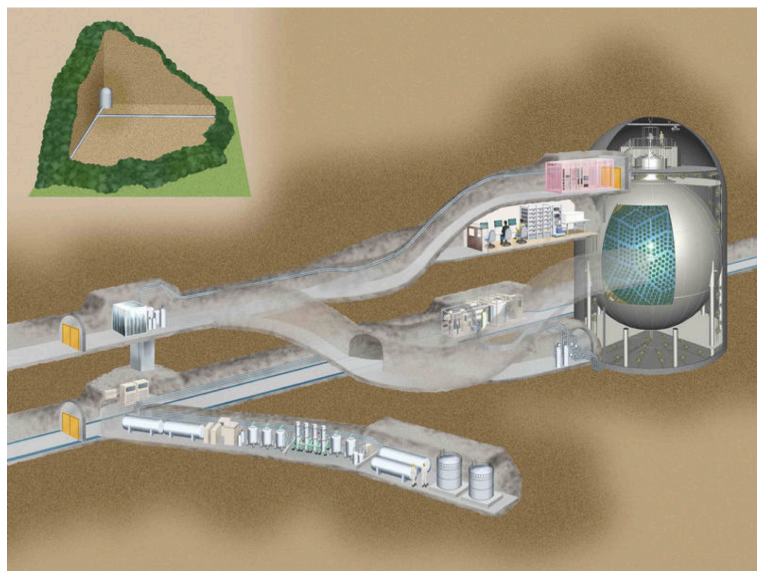


図 2.1: KamLAND の位置

利用する反応は、かつてのライネスとカワンの実験同様、逆 $\beta$ 崩壊である。反電子ニュートリノがターゲットである陽子と反応すると、陽電子と中性子が放出される。



この反応のあと、陽電子はすぐに電子と対消滅し、0.511MeV の  $\gamma$  線を二本放出する。

一方、中性子は平均  $200 \mu\text{s}$  で捕獲され、 $2.2\text{MeV}$  の  $\gamma$  線を放出する。



陽電子による先発信号と、中性子捕獲による後発信号の遅延同時計数によって、反電子ニュートリノによる逆 $\beta$ 反応とバックグラウンドの信号を区別する。シンチレーション光に対する感度が非常に良いため、数  $100\text{keV}$  程度の低エネルギーのニュートリノに大しても感度がある。

また、 $\gamma$ 線に感度があるため、散乱電子のイベントを見ることもできる。そのため、解析でバックグラウンドが除去できれば太陽ニュートリノ等も観測可能であると考えられる。

ただし、シンチレーション光は放射状に一樣に広がるため、今のところニュートリノの飛来方向の情報は取得できない。方向情報の取得方法に関しては、現在研究中被ある [14]。

## 2.2 装置の概要

### 2.2.1 KamLAND の構造

KamLAND はカミオカンデの跡地に作られたため、円筒状の縦穴に検出器が入っている。一番外側には、円筒状のタンクがあり、その内側に直径  $18\text{m}$ 、容量  $3,000\text{m}^3$  の球形のステンレス製のタンクがある。ステンレスタンクの中を ID (内部検出器)、外側を OD (外部検出器) と呼ぶ。円筒状のタンクと球形タンクの間である OD の部分は純粋で満たされており、PMT が設置されている。ID の中は、更に 2 重構造になっていて、直径  $13\text{m}$  の球形のバルーンが入っている。バルーンの外側は BO (バッファオイル層) で満たされており、PMT が取り付けられている。バルーンの内側には液体シンチレータで満たされている (図 2.2)。

### 2.2.2 OD (外部検出器)

OD は、直径  $20\text{m}$ 、高さ  $20\text{m}$  の円筒型のタンクとステンレスタンクの間を指す。OD の中は  $3,200$  トンの超純粋で満たされており、中にはカミオカンデから譲り受けた PMT が取り付けられている。この超純水は鉱山内の水源を利用しており、フィルタリングや逆浸透膜 (RO 膜) を用いて、放射線物質などの不純物質を除去したのち、OD 内部に送られ、 $8$  トン/hour の流量で循環させている。OD の外壁は岩盤で覆われているため、その岩盤からラドンが内部に溶けていかないよう、表面を樹脂

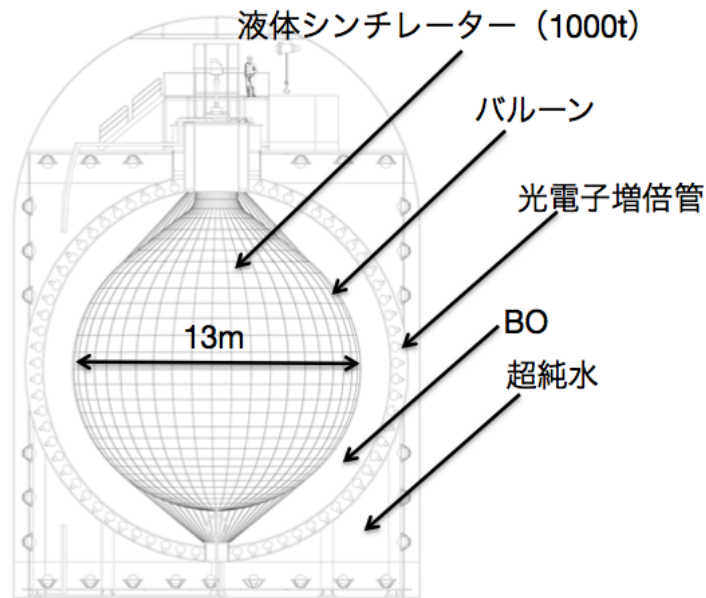


図 2.2: KamLAND 検出器の構造

でコーティングしている。一方 PMT は 20” のものが 225 本、8” のものが 16 本、5” のものが 6 本あり、OD 内の微弱な光を検出することができる。

この超純水と PMT により、カミオカンデ同様、OD は水チェレンコフ検出器として機能する。OD は、岩盤由来の環境放射線の遮蔽する役割と、宇宙線ミューオンなどに対する veto カウンターとしての役割とがある。また、原料の地下水は年間を通して 10℃ 程度の一定の温度に保たれており、この超純水により、検出器内部の温度を一定に保つことができる。PMT や HV 機器類などは発熱するため、冷却と温度調整の役割も担っている。

### 2.2.3 ID (内部検出器)

ステンレスタンクの中の ID は、バルーンによって 2 層に分けられている。直径 13m のバルーンの中は、液体シンチレータで満たされており、 $\gamma$  線と反応すると発光する。バルーンとタンクの間は、厚さ 2.5m のバッファオイル層 (以下 BO 層) になっていて、発光しないパラフィンオイルで満たされている。また、BO 層には PMT が取り付けられており、液体シンチレータによる発光イベントを検出することができる。ここでは、フィルムや液体シンチレータ、BO の組成や PMT について述べる。次に、液体シンチレータについて述べる。KamLAND の ID のバルーンの内部は、1,000

トンの液体シンチレータで満たされている。液体シンチレータには、大きな発光量、透過率が良いこと、放射性不純物質が少ないこと、長期安定でバルーンへのダメージが小さいことなど様々なことが要求される。この要求を満たすような液体シンチレータが研究され、開発された。以下にカムランド液体シンチレータの組成を示す(表 2.1)。

N12(ドデカン)	80.2 %
PC(1,2,4トリメチルベンゼン)	19.8 %
PPO(2,5-ジフェニルオキサゾール)	1.36g/L

表 2.1: カムランド液体シンチレータの組成

また、放射性不純物質の量も非常に重要で、その含有量は以下のようになっている(表 2.2)。

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

表 2.2: LS 中の放射性不純物質の含有量

次に、バルーンについて述べる。バルーンは KamLAND 上部のチムニーからケブラーと呼ばれる素材でできたロープによって吊り下げられている。ケブラーはスーパー繊維として知られており、この繊維を縦糸と横糸で編み込んだものを使用している。ケブラー紐は 44 本あり、この紐がバルーンにかかる重量を支えている。

次に、バルーンについて述べる。バルーンに使われているフィルムの素材は 5 層の積層構造となっている。5 層は [EVOH/Ny/Ny/Ny/EVHO] でできており、ラドンの漏れを押しやるため、ラドンの遮蔽能力の高いエバールでナイロンを挟み込む構造になっている。フィルムの厚みは  $135 \mu\text{m}$  であり、フィルムの透過率は 400nm の光に対して 96 % 程である。この構造により、強度と光透過度を両立している。

最後に BO 層について述べる。この層には、ドデカンとイソパラフィンで 53:47 の比で混合したバッファオイルが入っている。イソパラフィンは、昭和シェル石油(株)の「パラオール 250」という製品である。ステンレスタンク側には 1,879 本の PMT が取り付けられており、PMT のガラス面からラドンが溶け出さないよう、アクリル板で BO 層と仕切られている。

PMTの種類	時間分解能 [ns]	ピーク/バレー比
20"-PMT(Hamamatsu R3600)	6	1.5
17"-PMT(Hamamatsu RS7250)	3	3.9

表 2.3: 17" PMT と 20" PMT の性能

## 2.2.4 PMT とデータ収集システム

ステンレスタンクの内側に取り付けられている 1,879 本の PMT のうち、554 本はカミオカンデで使われていた 20" のもので、残りの 1,325 本は KamLAND 実験のために新調された 17" の PMT である。なお、この PMT の被覆率は全体で 34 % である。ここでは、PMT の構造と性質を示した (図 2.3、表 2.3)。

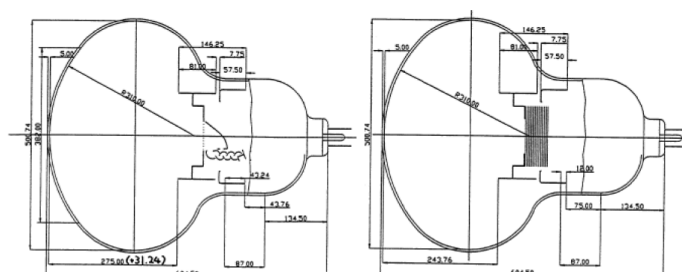


図 2.3: 17" PMT と 20" PMT の構造

17" PMT は、カミオカンデで仕様されていた 20" PMT のものを改良し、エネルギー分解能と時間分解能を改善させたものである。この 17" PMT は、ダイノード構造部分の初段がボックス型、後段がライン・フォーカス型の多段構造になっており、PMT の端付近では時間応答と光電子集率の悪化が起こる。そのため、端付近の光電面をマスクして遮光することで悪化を防いでいる。このため、大きさは変わらないが、17" PMT と呼ばれている。エネルギー分解能は、光電子の数の統計が大きいくほど良くなる。

$$\frac{\Delta E}{E} = 6.4 \times \frac{1}{\sqrt{E[\text{MeV}]}} [\%] \quad (2.3)$$

PMT による信号は、KamFEF(KamLAND Front-End Electronics) と呼ばれる電子回路によって、データのデジタイズ、選別・転送される。

## 2.3 KamLAND 実験の成果

KamLAND はこれまでに、2つの重大な成果を挙げている。まず一つ目が、原子炉ニュートリノの観測によるニュートリノ振動の発見である。KamLAND は、2002 年から稼働し、原子炉ニュートリノの観測を行った (図 2.4)。有効体積 408 トン、145.1 日分のデータを用いて解析を行ったところ、原子炉から飛来する反電子ニュートリノの検出数が、

$$(\text{検出数}-\text{BG})/\text{予測数} = 0.611 \pm 0.085(\text{stat}) \pm 0.041(\text{sys})$$

となった [3]。このことから、99.95 % の信頼度で、原子炉由来の反電子ニュートリノの消滅を観測したことになる。さらに KamLAND は観測を続け、2005 年には 515 日の観測データを用いてニュートリノ振動を 2 周期分観測することに成功した。

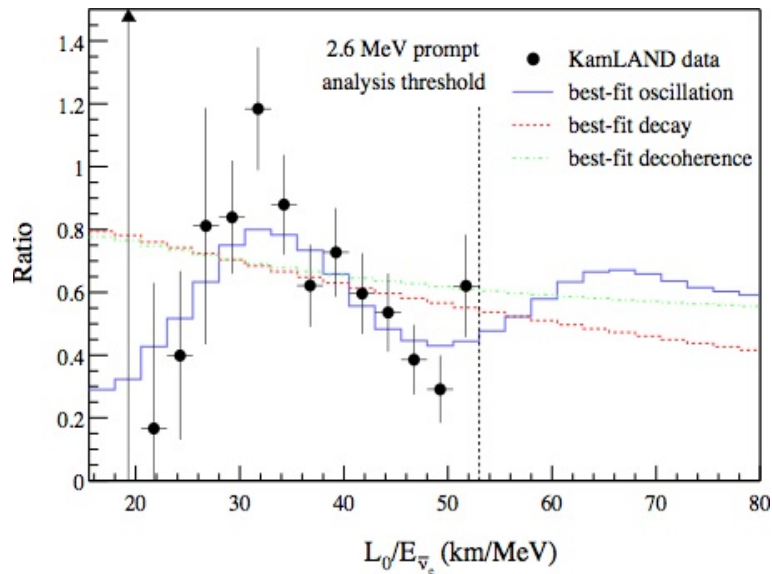
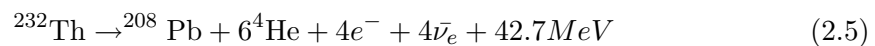
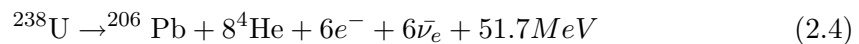
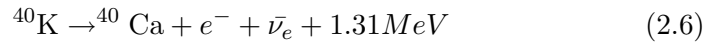


図 2.4: 原子炉ニュートリノのニュートリノ振動

二つ目は、地球ニュートリノの観測である。地球ニュートリノの観測意義は、地球内部の科学を科学することにある。地球内部では、ウラン・トリウム・カリウムなどの原子核が起源となって放射性崩壊を次々に起こし、熱が放出されていることが分かっていた。それらは様々な原子核を経由するが、最終的には安定な原子核に落ちる。反応をまとめると、以下のようなになる。





しかし、その正確な量や地球内部の分布については長い間解明されず、謎となっていた。KamLANDは2005年、解析の結果から地球内部のウラン・トリウム由来の反電子ニュートリノの観測に成功し、99%の信頼度でウラントリウムによる地球の放射化熱に60TWという上限値をつけた(図:2.5[8])。地球の放射性崩壊による熱生成に関しては、隕石の含有量の調査や地質学による調査などから、様々なモデルが提唱されてきたが、直接的な観測はそれまでなされたことがなかった。放射熱は44.2TW程度であると考えられるが、KamLANDの解析結果では、放射性崩壊による熱生成は約21TWという結果になった。このことから、地球が冷えてつある可能性が高いということが分かった。この成果により、地球物理学に新たな扉が開かれることとなった。

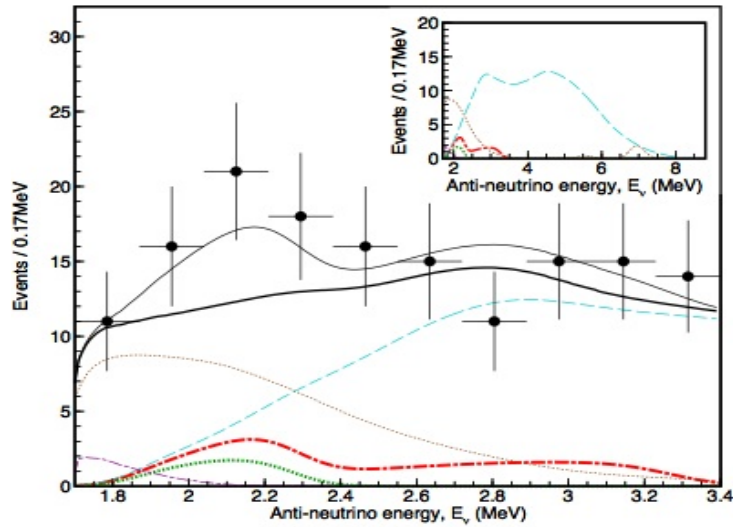


図 2.5: KamLAND による地球ニュートリノの検出

## 第3章 KamLAND-Zen

### 3.1 研究目的

KamLAND-Zen とは、Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector Zero neutrino  $\beta\beta$ -decay experiment のから名前を取った実験で、カムランド禅とも表記される。 $^{136}\text{Xe}$  を 320kg 用いて、ニュートリノレス二重 $\beta$ 崩壊を検出することで、ニュートリノのマヨラナ性の証明と、質量階層構造（縮退構造まで）の解明を目的としている。ニュートリノの有効質量に上限値をつけることで、KKDC クレームによる制限を排除することも目的としている。

### 3.2 検出器の構造

#### 3.2.1 装置の概要と検出原理

KamLAND-Zen では、KamLAND 検出器の中に直径 3.14m の小さいバルーン（ミニバルーン）を用意し、中を  $^{136}\text{Xe}$  を 320kg 溶かした液体シンチレータで満たした (図 3.1)。

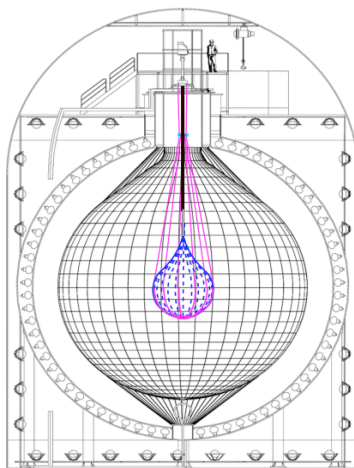


図 3.1: KamLAND-Zen の構造



$^{136}\text{Xe}$ が二重 $\beta$ 崩壊を起こすと、2 $\nu$ モードも0 $\nu$ モードも電子が2つ飛び出す。飛び出した電子は、そのエネルギーを液体シンチレータ中で落とし、発光イベントとしてPMTを介して検出される。二重 $\beta$ 崩壊を起こす核子は他にもあるが、その中でも $^{136}\text{Xe}$ を採用した理由を以下に示す。

- (1) 二重 $\beta$ 崩壊の際のQ値が2.458MeVと高い
- (2) 極めて稀なイベントである二重 $\beta$ 崩壊の半減期が他の核種よりも短い。
- (3) 希ガス元素であるため、安定である。
- (4)  $^{136}\text{Xe}$ の天然存在比が多く、濃縮も容易である。
- (5) カムランドの液体シンチレータへの溶解度が約3wt %と高い。

(1) まず、Q値が高いということは、他の信号との区別において非常に有利である。KamLANDにおけるイベント数のエネルギー分布を見ると、数MeV以下の低エネルギー領域にはたくさんのイベントが存在している。0 $\nu$ モードの観測はシングルイベントであるから、バックグラウンド多い領域での実験は避けたいのである。ただし、エネルギーがいくら高くても、0 $\nu$ モードの崩壊が少ない核種では観測が難しい。そこで、理由の2つ目の要請が出てくる。

(2)  $^{136}\text{Xe}$ はニュートリノの有効質量2 $\nu$ モードと0 $\nu$ モードの崩壊の半減期の比が小さい。ニュートリノの有効質量 $\langle m_{\nu} \rangle^2 = 150\text{meV}$ と仮定して、見積もられている半減期の比は、以下ようになる。

$$\frac{T^{0\nu}}{T^{2\nu}} = 2.16 \times 10^5 [\text{year}/\text{year}] \quad (3.1)$$

この値は他の原子核と比較すると非常に小さい。検出器の分解能によって、0 $\nu$ モードの線スペクトルは幅を持つが、この値が小さいことで分解能に対する要求が緩くなる。(3)Xeは元素周期表の18族に含まれ、希ガス元素と呼ばれる一種である。そのため、化学的に極めて安定で、液体シンチレータやバルーンに与えるダメージが非常に少ない。

(4)  $^{136}\text{Xe}$ の天然の存在比は8.86 %ほどで、非常に多い。また、常温で気体であり、希ガスであることから、同位体濃縮が容易である。この性質により、非常に高い純度の $^{136}\text{Xe}$ を実験に使うことが可能となる。

(5) 液体シンチレータへの溶解度も非常に重要で、 $^{136}\text{Xe}$ の溶解度が3wt %と高いことで、検出器内部に大量に投入することが可能である。

## 3.3 KamLAND-Zen 実験の成果と現状

### 3.3.1 KKDC-claim の排除

KamLAND-Zen は 2011 年 9 月から実験を開始し、ニュートリノの質量の上限値や  $^{136}\text{Xe}$  の  $2\nu\cdot 0\nu$  モードの半減期に上限値をつけるなどの成果を挙げている。その成果の中でも、特に重大な結果は、KKDC クレームの排除である。2003 年、 $^{76}\text{Ge}$  を用いた二重  $\beta$  崩壊実験である、Heidelberg-Moscow 実験の一部の研究者が  $^{76}\text{Ge}$  の  $0\nu$  モードの二重  $\beta$  崩壊を観測したと主張し、ニュートリノの質量階層構造に制限がかけられることとなった (KKDC-claim)。また、ニュートリノの有効質量と  $0\nu$  モードの半減期には以下のような関係がある。

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \langle m_\nu \rangle^2 \quad (3.2)$$

彼らは、半減期からニュートリノの有効質量に上限値を計算した。結果は、

$$T_{1/2}^{0\nu} = 2.23 \times 10^{25} [\text{year}] \quad (3.3)$$

$$\langle m_\nu \rangle^2 = 320 [\text{meV}] \quad (3.4)$$

となった [9]。しかしながら、この結果は研究グループの中でたったの 4 人のみが主張したこともあり (2013 年 1 月現在は 2 人のみで KK-claim と呼ばれる)、この結果の実証が求められていた。KamLAND-Zen は、同じ  $^{136}\text{Xe}$  を用いた実験である EXO-200 と統計結果を足し合わせ、 $^{136}\text{Xe}$  の  $0\nu$  モードの半減期と有効質量に制限をつけた [10],[11]。

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.9 \times 10^{25} [\text{year}] \quad (3.5)$$

$$\langle m_\nu \rangle < 120 - 250 [\text{meV}] \quad (3.6)$$

なお、有効質量に幅が存在するのは、核行列要素等のモデルに不定性が存在するためである。この結果と、GCM や NSM などのモデルとの結果を比較することで、長い間問題となっていた KKDC クレームの結果を 97.5 % の信頼度で否定することに成功した。図 3.2 は、横軸に  $^{136}\text{Xe}$  の  $0\nu$  モードの半減期、縦軸に  $^{76}\text{Ge}$  の  $0\nu$  モードの半減期をとって、KamLAND-Zen や EXO-200 などの二重  $\beta$  崩壊実験と、モデルによる制限を比較したものである。Heidelberg-Moscow 実験による結果から、 $^{76}\text{Ge}$  の  $0\nu$  モードの半減期に制限がかけられている。同様に、Xe を用いた実験では  $^{136}\text{Xe}$  に対する半減期のみが得られるが、KamLAND-Zen と EXO-200 で統計を足し合わせることで、より厳しい下限値が得られた。ここで、あるモデルを仮定した際に、理論から予

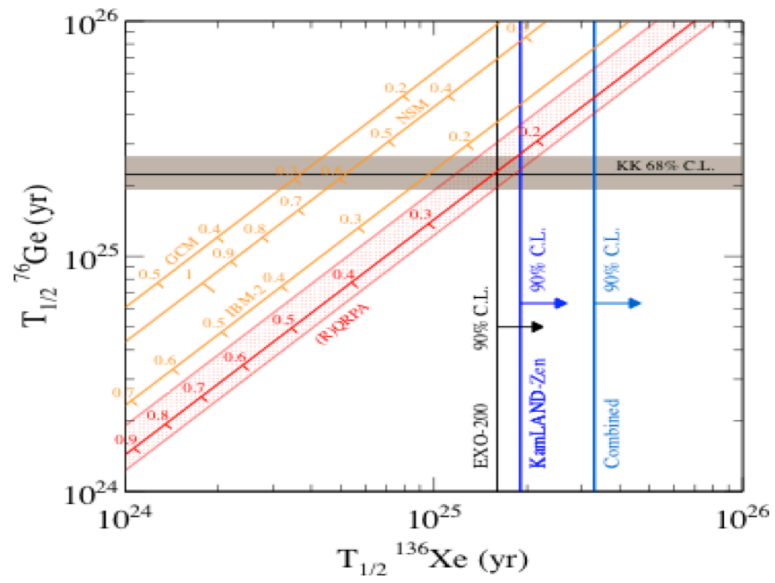


図 3.2: KKDC-claim の排除

想される核行列要素を用いて、ニュートリノの有効質量ごとに  $^{76}\text{Ge}$  と  $^{136}\text{Xe}$  の  $0\nu$  モードの半減期をプロットすると、半減期の比に制限が加えられる。KamLAND-Zen と EXO-200 の結果とモデルによる制限を比較すると、KK クレームを高い信頼度で否定したことが分かる。

### 3.3.2 KamLAND-Zen の現状

KamLAND-Zen では、現在も  $0\nu$  モードの二重  $\beta$  崩壊を探索している。取得したデータを解析し、エネルギースペクトルを見積もると、図 3.3 のようになる。

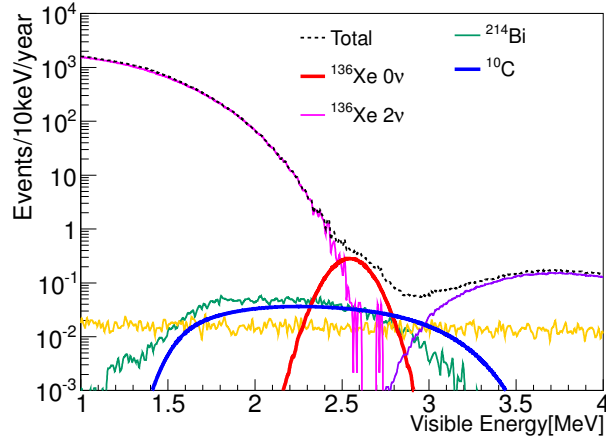


図 3.3: KamLAND-Zen の予想されるエネルギー分布

条件は、 $0\nu$  の有効質量  $\langle m_{\beta\beta} \rangle = 150 \text{ meV}$  を仮定し、有効体積は  $r < 1.2 \text{ m}$  でカットしており、バルーンの  $^{238}\text{U}$  を  $3.1 \times 10^{-12} [\text{g/g}]$  とし、 $^{10}\text{C}$  を 84.4 % タグしたとして Q 値 ( $2.467 \text{ MeV}$ ) の  $-1\sigma \sim +2\sigma$  までのバックグラウンドを見積もっている [15]。これを表に示したものが表 3.1 である。現在は Xe に宇宙線があたることで生成してしまう  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  の崩壊が  $0\nu$  のエネルギー領域にかかり、深刻なバックグラウンドとなっているため、Xe 含有液体シンチレータの純化が進められている。また、新しいエレクトロニクスである MoGURA の開発で、デッドタイムフリー集積回路による波形の取得率が向上すれば、 $^{10}\text{C}$  のタギングで大幅にバックグラウンドを差し引くことが可能と期待されている。

$^{136}\text{Xe}^{2\nu}$	$^{208}\text{Tl}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{10}\text{C}$	$^{11}\text{Be}$	$^8\text{B}$	Total	$^{136}\text{Xe}^{0\nu}$
3.42	$3.32 \times 10^{-3}$	1.01	1.62	0.10	0.48	6.64	6.60

表 3.1: KamLAND-Zen 実験における予想される BG[event/year]

KamLAND-Zen では、有効質量  $\langle m_{\beta\beta} \rangle \sim 80 \text{ meV}$  まで迫ることができると考えられている。もし、ニュートリノの質量の検出感度が  $20 \text{ meV}$  まで迫れるとすると、逆階層構造を検証することができる。また、その場合、ニュートリノの質量構造が逆階層で

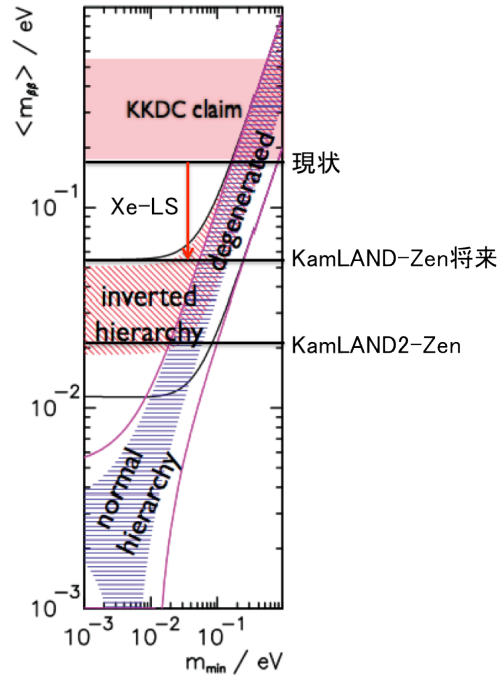


図 3.4: 質量階層構造とニュートリノ有効質量  $\langle m_{\beta\beta} \rangle$

あれば、 $0\nu$ 二重 $\beta$ 崩壊を発見することが可能であると期待されている。現在、我々のグループは、検出器を改良して検出感度を引き上げる計画を立てている。

### 3.4 KamLAND-Zen の将来計画と本研究の研究動機

KamLAND-Zen では Xe を用いてニュートリノレスの二重 $\beta$ 崩壊を探索するとともに、質量階層構造の調査も行っている。しかしながら、2013 年 1 月現在、世界中で行われているどの実験グループも、0 $\nu$ モードの二重 $\beta$ 崩壊の観測には未だに至っていない。KamLAND 検出器で 0 $\nu$  $\beta\beta$ の信号を見た場合、Q 値が高いものの、シングルイベントであるため、バックグラウンドのレートが高いと、0 $\nu$ モードの信号はバックグラウンドに埋もれてしまう。現在は、純化やタギングなどで $^{110m}\text{Ag}$ や $^{10}\text{C}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ などのバックグラウンドを減らす努力が続けられているが、2 $\nu$  $\beta\beta$ による信号は避けることのできないバックグラウンドとなる。2 $\nu$ の信号と0 $\nu$ の信号は、エネルギーによってのみ分別できるため、エネルギー分解能の改善が必須となる。エネルギー分解能と集光量は以下の関係にある。

$$\frac{\Delta E}{E} \propto \frac{1}{\sqrt{n[\text{photon}]}} \quad (3.7)$$

したがって、検出器全体を改良し、集光量を引き上げることで、2 $\nu$ のバックグラウンドを0 $\nu$ のイベントに対して相対的に減らすことができる。そこで、我々のグループは、KamLAND-Zen の次期フェイズとして、新たに KamLAND2-Zen を計画している。完成予想図を図 3.5 に示した。

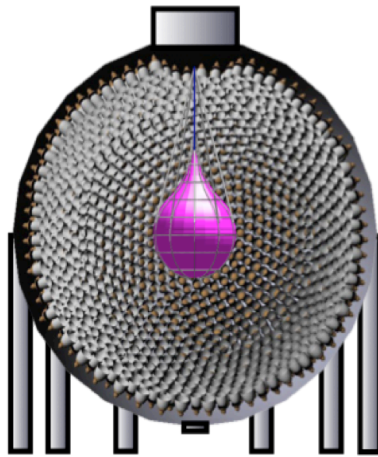


図 3.5: KamLAND2-Zen

主なアップグレードは以下のようになる。

- 1,000kg の  $^{136}\text{Xe}$
- 大光量液体シンチレータの開発
- ウィンストンコーン（集光ミラー）の開発

・極低 BG 環境の維持

大量の  $^{136}\text{Xe}$  を用い、集光ミラーと大光量液体シンチレータの開発により集光量を増やし、感度を大幅に上げることで5年間のデータ取得で逆階層構造の検証を行うことを目指している。予測感度を図 3.4 に示した。

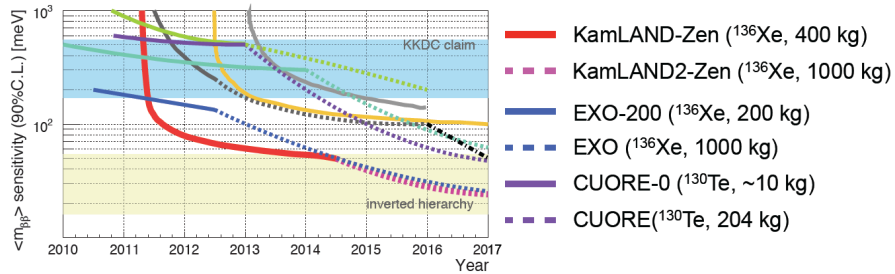


図 3.6: KamLAND2-Zen の  $\langle m_{\beta\beta} \rangle$  に対する予測感度

本研究では、大光量液体シンチレータと集光ミラーの開発について行った。大光量液体シンチレータの開発では、発光量が現在ものの 1.5 倍の液体シンチレータの開発を目標に研究を進めた。集光ミラーの開発では、PMT の被覆率を 2 倍程度に引き上げることで、集光率を 1.8 倍にすることを目標に研究を進めた。この効果で、集光量を 2.7 倍程度に増やせ、分解能を現在の 0.6 倍にすることを目標とした。この開発が成功すれば、バックグラウンドが分解能のおよそ 5.8 乗に比例することから、バックグラウンドのレートは  $0.6^{5.8} \approx 1/20$  程度に減少すると期待される。

## 第4章 集光ミラーの開発

### 4.1 研究目的・目標

エネルギー分解能は、集光率をあげることで改善が可能である。現在の KamLAND には、光電子増倍管が裸の状態ですテンレストンクに取り付けられており、20 インチのものが 554 本、17 インチのものが 1,325 本ある (表 4.1)。KamLAND 検出器を、中心から PMT までを半径とする球として表面積を計算し、PMT の光電面の全面積と比較して被覆率を計算すると、34 %となる。もし、ミラーを取り付けて、事実上の被覆率を引き上げることができれば、集光率は倍増する (図 4.1)。本研究では、この効果によるエネルギー分解能の改善を目指す。

	17" PMT	20" PMT	Total
本数 [本]	1,325	554	1879
面積 [m <sup>2</sup> ]	0.146	0.203	306
被覆率 [%]	22	12	34
時間分解能 [nsec]	3	6	

表 4.1: 17" PMT と、20" PMT のパラメータ

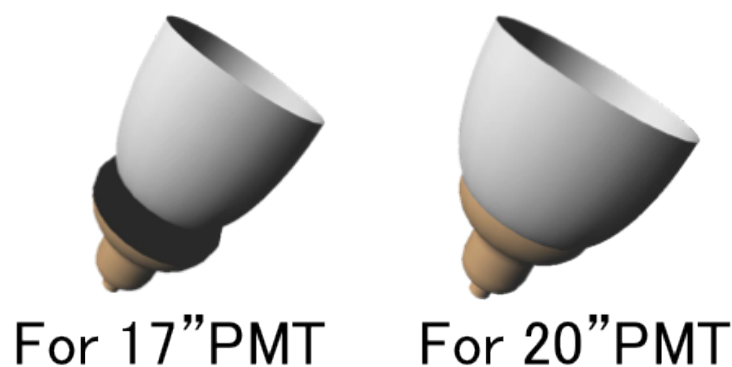


図 4.1: 17" と 20" の PMT 用のコーンの完成予想図



## 4.2 シミュレーション

本研究では、Borexino の論文 [7] を参考に、集光ミラーの形としてウィンストンコーン型を採用し、集光率の増効果を確認するためにシミュレーションを行った。以下にその形状の決定方法を記載する。

発光イベントが起こりうる場所として球を仮定し、その球の断面図の半円の最も遠い点と、PMT の光電面の遠い方の端の点を結ぶ長さが一定の糸を考える。糸の両端を固定したまま、この糸が常に張った状態で糸を引っ張ると、その引っ張った点の軌跡は楕円を描く。これを回転させることで、コーン型の立体面ができる。この方法で作られたコーンをストリングコーンという。この方法で作られたミラーに入った光は、1回～数回の反射の後、光電面に導かれる（二次元では1回の反射で光電面に入る）。図 4.2 は、有効体積の半径 1.2m の球と、その中心から 300cm に光電面の中心がある場合のウィンストンコーンの図である。

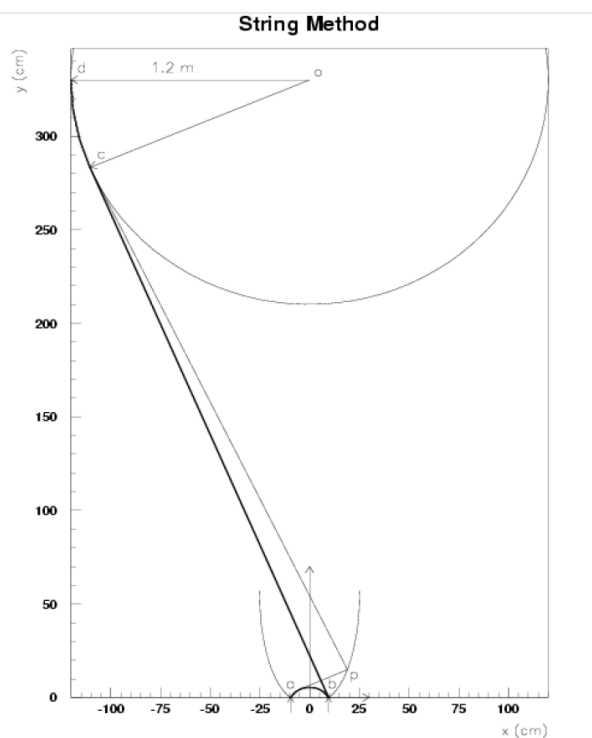


図 4.2: Winston-Cone 型の形の決定方法

この方法で 17”PMT 用と 20”PMT 用のミラーの形を仮定した。仮定した長さや形のパラメータを以下に示す (表 4.2、図 4.3、図 4.4)。光電面と接している方のコーンの径 (Exit Radius) は、PMT の光電面の大きさから一意的に決まる。コーンの長さ

(height) は、特に重要なパラメータで、短すぎるとミラーが集光の役割を果たさず、長すぎると隣の PMT につけたコーンと干渉してしまう。今回のシミュレーションでは、以下の図のような形のミラーを、KamLAND 内のすべての PMT に取り付けられた場合を想定した。入り口の半径と出口の半径から、すべての PMT にミラーを取り付けた時の被覆率が計算できる。計算によると、(ミラーの有りの PMT の全面積) / (ミラーなしの PMT の全面積) = 1.95 となるため、被覆率は 34 % から 66 % 程度にまで向上すると考えられる。

Winston Cone	For17" PMT	For20" PMT
Critical Angle[deg]	55.83	56.62
Entrance Radius[cm]	29.77	36.23
Exit Radius[cm]	21.83	25.4
Height[cm]	34.175	41.88

表 4.2: 17" PMT 用及び 20" PMT 用ミラーの形状

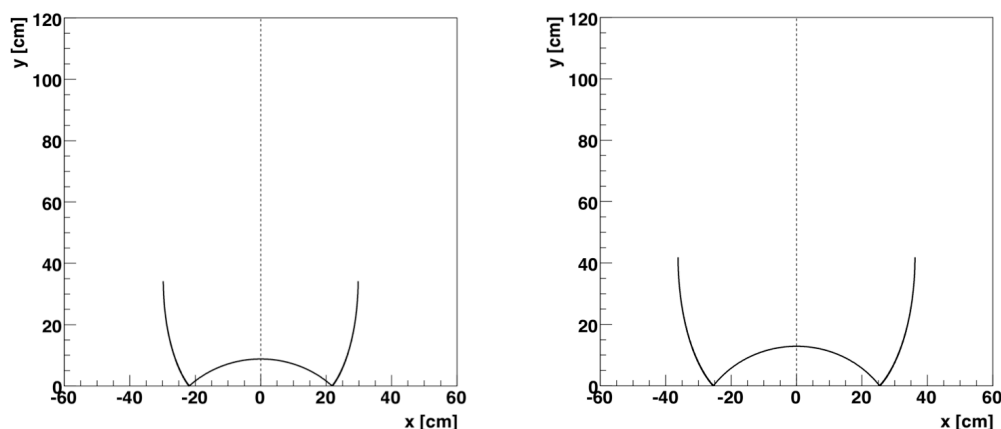


図 4.3: 仮定したミラーの形状 (17" PMT 用)      図 4.4: 仮定したミラーの形状 (20" PMT 用)

このミラーの反射率を全角度、全波長領域において 85 % としてフルシミュレーションを行い、ミラーの有無で集光量の違いを比較した。Geant4 と呼ばれるシミュレーションソフトを用い、発光イベントを KamLAND の中で発生させ、PMT に入る光子の数をシミュレートした。Geant4 では、KamLAND の液体シンチレータの発光イベントが、液体シンチレータの中で吸収再発光する効果や、バルーンでの反射・吸収・透過のプロセスを考慮してシミュレーションを行うことができるため、それらのプロセスも考慮した。このシミュレーションでは、発光点を KamLAND の中心からずら

していき、ミラーの有無での集光率の違いをプロットした。発光イベント数は1000イベントで、Q値は $^{136}\text{Xe}$ の $0\nu\beta\beta$ 崩壊の値である2.467MeVを仮定した。以下にその結果を示す(図4.5)。横軸はKamLAND検出器の中心からの距離であり、縦軸は光電面に入る光の数である。ミラーの有無でそれぞれ7点ずつプロットし、下の点の集合がミラー無しを仮定した集光量示しており、上の点の集合がミラー有りを仮定した集光量を示している。

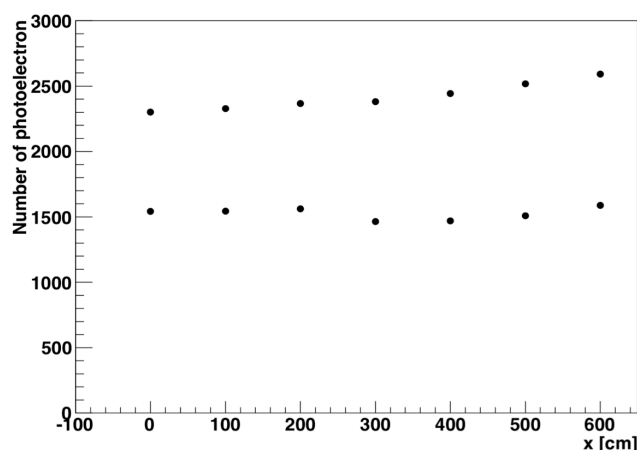


図 4.5: ミラー有無での集光量の比較

ミラーの取り付けによる効果で、集光率は検出器全体で少なくとも1.5~1.7倍に増加する見込みとなった。被覆率の増加が1.95倍であるので、反射率が85%のコーンの中で平均1回反射して光電面に入ると仮定すると、ミラーの取り付けによる予想値は1.65倍となる。これはシミュレーションの結果と一致する。また、シミュレーションによれば、KamLAND内部のどの領域の発光イベントに対しても、ほぼ様に集光率の向上が得られる見込みとなった。ミニバルーンの半径は1.57mであるので、その内側のKamLAND-Zenの $0\nu\beta\beta$ 崩壊の探索の領域と、ミニバルーンの外側であるKamLANDの地球ニュートリノや原子炉反ニュートリノ検出の領域の両方の領域の発光イベントに対して、ミラーの効果があることがわかった。ただし、このシミュレーションではミラーの反射率を一律に85%としているが、実際のミラーの反射率には角度依存性や波長依存性が存在する。後述するが、オイル中でのアルミの反射率は、高入射角で非常に高くなる振る舞いを示すので、シミュレーションの結果よりも増倍効果が高まる可能性がある。

## 4.3 反射率測定

### 4.3.1 測定装置

ミラーの開発に当たって、空気中及び、液中での反射率を測定する必要がある。本研究では、分光器やPMTなどの光学部品（島津製作所）と、自作した反射率測定治具を用いて反射率の測定を行った。ここでは、測定に用いた器具及び機材と、測定の方法について述べる。使用した機材を以下に示す。

- ・島津ステッピングモータ&コントローラ（AT-100PCC）
- ・島津小形分光器スペクトロメイト ホトマルホルダ（AT-120PM）
- ・島津小形分光器スペクトロメイト チョップユニット（AT-120CH）
- ・分光器用コントロールアンプ（AT-120AP）
- ・島津小形分光器スペクトロメイト（SPG-120UV）
- ・島津小形分光器スペクトロメイト キセノンランプ単色光源セット
- ・光ファイバー付き積分球
- ・窓付きミラー置き台（自作）

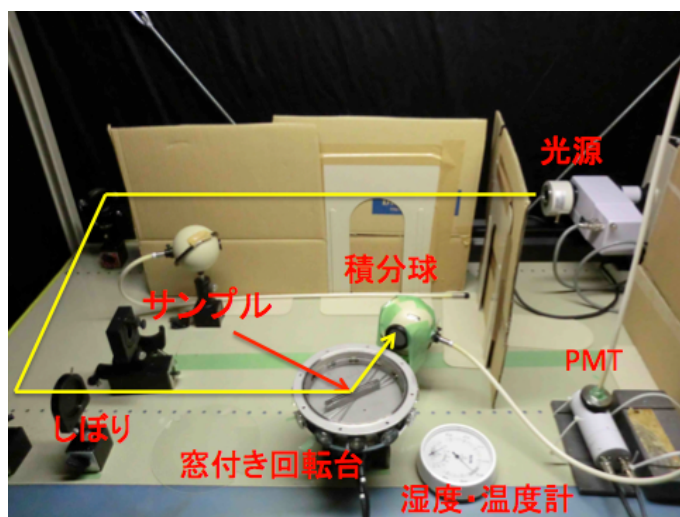


図 4.6: 反射率測定装置

図 4.6 に、反射率測定装置のセットアップを示した。光源からの光は、光学ミラーを経て2.5mほどの距離を進んだ後、しばり（しばり）で直径2mmほどの円形の点にコリメートされ、サンプルのミラーで反射されて積分球に入る。積分球に入った光は光ファイバーを通り、PMTで信号として検出される。サンプルミラーを置かずに直接積分球に光を入れて測定した値をリファレンスとし、反射後のデータをその値で割ることで反射率を測定できる。光源からの光は200nm～900nmまでグレーティングにより1nmス

トップで波長が変更可能であり、本実験では 1nm ごとに測定を行った。ロジックを以下に示す (図 4.7)。

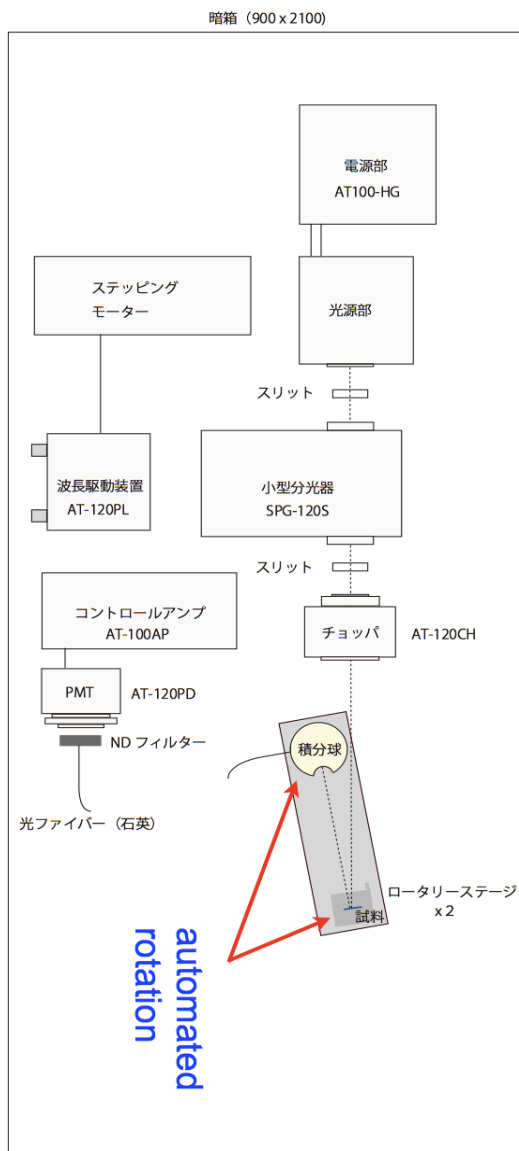


図 4.7: 反射率測定のリジック

分光器とロータリーステージは PC で制御できるため、波長依存性と角度依存性のスキャンを自動化した。また、リファレンスは測定の前後に 5 回ずつとり、その 10 回の平均値を基準に反射率を計算した。反射率は、測定の前後 5 回ずつ (計 10 回) 取ったリファレンスの Voltage の波長ごとの値を平均し、その値で反射後の値を割ることで求められる。

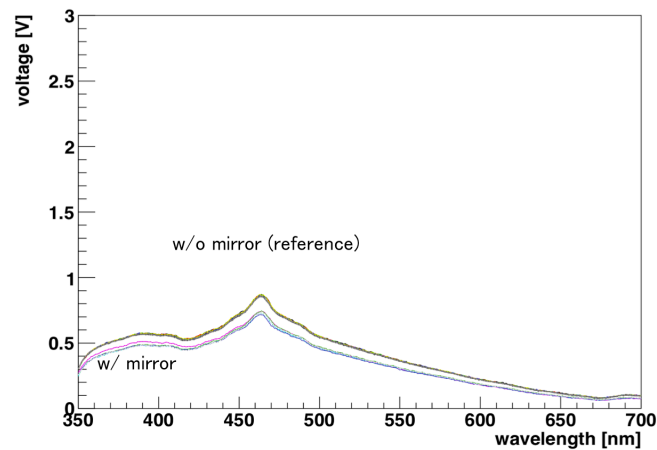


図 4.8: 反射率測定 (Voltage のデータ)

図 4.8 にリファレンスとミラー反射後の PMT の信号をそれぞれ示した。横軸に波長を取り、縦軸に PMT の信号の強さを取ると、信号の強さに波長依存性があることがわかる。これは光源の Xe ランプの波長依存性と、PMT の量子効率の波長依存性、および治具の窓の透過率の波長依存性が原因である。

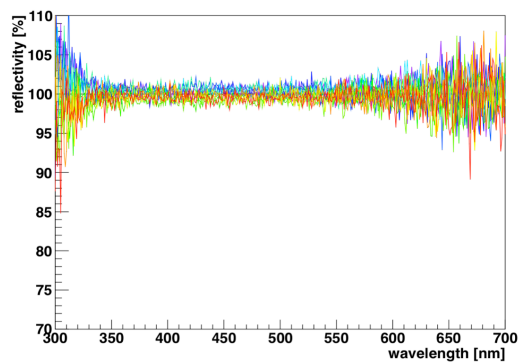


図 4.9: 反射率測定の安定性 (2 時間測定)

測定の誤差についても検討した。図 4.9 に測定装置の安定性を示した。この結果から、光源や HV 装置の時間変化による揺らぎの効果をすべて合わせて、400nm 付近では 2 時間の測定で 1.5 % 以下であることがわかっている。この揺らぎの割合は信号の

強さに反比例するため、液体の透過率やPMTの感度、光源の強さに依存する。そのため、350nm以下の低波長領域と600nm以上の高波長領域では感度が低下することから誤差が著しく大きくなる。また、この測定装置の系統誤差は1.5%しているが、この値は、湿度70%以下かつ周辺温度20~25℃、HVと光源の電源の安定のために、電源を入れてから一時間待つという条件のもと評価している。そのため、この暗室内部は実験中スポットクーラーによって温度が22℃以下、湿度50%以下という空調がなされている。

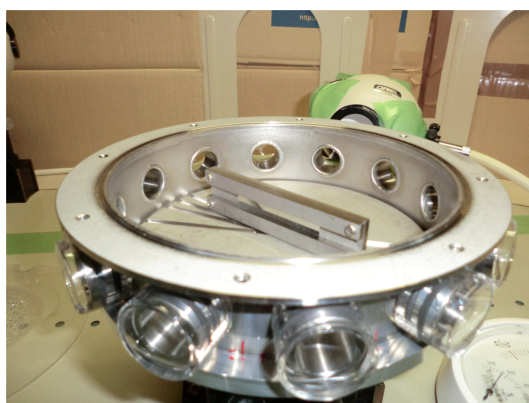


図 4.10: 自作した液中での反射率測定用持具

本研究では、液中でのサンプルの液中での反射率を測定するため、新しい治具を自作した。自作した治具を図に示す(図 4.10)。この治具はロータリーステージの上に設置することができ、この窓付き治具を回転させることで、中央に設置したミラーを軸をずらさずに精確に回転させることができる。したがって、反射後の光をすべて積分球に入れるため、積分球がこのロータリーステージの倍の角度を動くよう、プログラムで制御している。この部品には、12個の窓が付いており、15度刻みで反射率を測定できるようになっている。なお、測定に必要な溶液の量はおよそ700mlである。この値に対して液が少なすぎると空気中で反射がおきてしまうし、多すぎるとロータリーステージの重量制限である3kgを超えてしまうため、溶液を入れた後は治具全体の重量を測定し、3kg未満であることを確認する必要がある。

反射は窓を通ることになるため、窓の個性について考察する必要がある。ロータリーステージを回すことで、窓を変えながら測定を6回行い、全窓に対して評価を行った。リファレンスの値は、計6回の測定値を平均したものを使用した。その結果を図 4.11 に示す。横軸に波長、縦軸に安定性を取ると、窓の個性による信号のふらつきが確認できる。この測定により、350nm~600nmの波長の光に対する窓の個性による誤差の影響が、±1.0%未満であることが分かる。

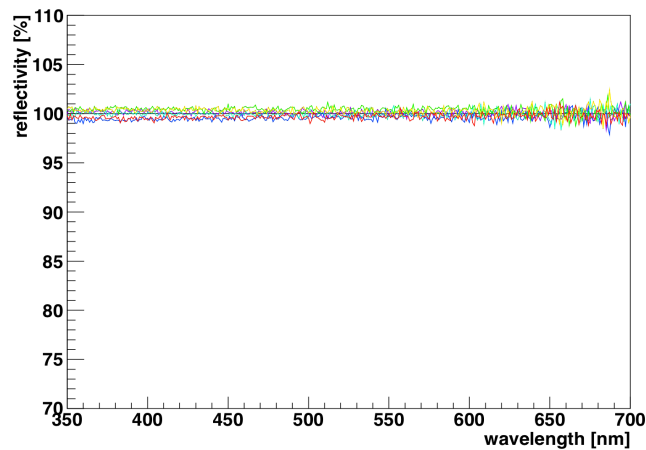


図 4.11: 反射率測定用持具の窓の個性

## 4.4 ミラー開発

### 4.4.1 ミラーへの要求と開発の手順

選定を行う前に、集光ミラーに求められる性能と、開発の手順を確認した。まず、ミラーへの要求として挙げられるのが、以下の4つである。

- (1) 反射率 > 85 %
- (2) 化学的安定性 > 5~10 年
- (3) 低放射能 < 今の PMT 程度
- (4) しなやかさ

(1) 反射率は、目標とする装置の改良を行うために必要な条件である。素材は、発光イベント付近の波長領域に対し、全角度で反射率が良いものの中から選定した。また、選定後もこの条件を満たすことを確認するため、反射率測定装置を用いて性能評価を行いながら開発を進めた。

(2) 化学的安定性は、KamLAND2-Zen の実験期間中、バッファオイル層の中でミラーが経年変化しないことが求められている。この要求を満たすことを確認するため、本研究では素材の選定後、加速試験による性能評価を行った。

(3) 低放射能は、シンチレーターを用いる実験には欠かせない要素である。放射性



崩壊を起こしやすい核種が多く含まれてると、ニュートリノ反応のバックグラウンドとなってしまうため、極低放射能環境を維持するために必要である。

(4) しなやかさは、ミラーをコーンの形に維持するために必要な条件である。もし、基板の厚みを薄くして柔らかく作りすぎるとコーンは形を維持することが難しくなる。一方で基板を厚くして固く作りすぎると、隣のコーンと接触した場合にミラー全体が歪んでしまう恐れがある上、低放射能も同時に欠いてしまう。コーンの整形にちょうど良い厚みを吟味することはこの研究において重要である。

この4つの条件を持たすようなミラーを開発するため、本研究では、初めに既存の製品サンプルの測定などから、この4つの要求を満たす素材の選定を行った。次に、最終的には集光ミラーを大量に生産することを踏まえて、平面ミラーを試作し、性能評価を行った。

#### 4.4.2 ミラーの選定

ミラーの開発に当たって、まずは素材の選定を行った。一般的に広く利用されている素材としては、以下のようなものが挙げられる。

- ・金
- ・アルミ膜
- ・銀
- ・誘電多層膜

また、一般的な金属の反射率について、図 4.12 に示した。

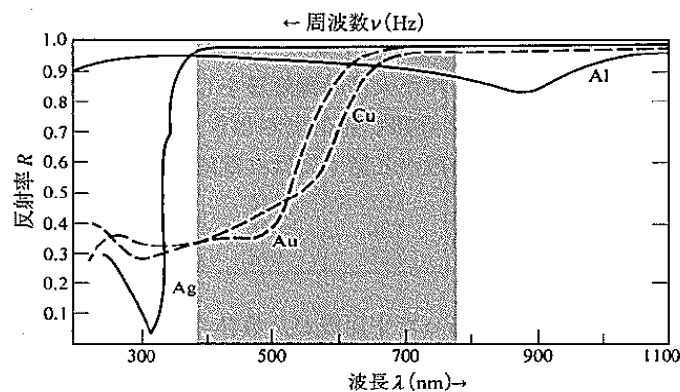


図 4.12: 波長に対する、金・銀・銅・アルミの反射率 [21]

まず、金についてであるが、化学的安定性は抜群に良いものの、反射率の波長依存性が大きい上に非常に高価であるため、素材として不適である。次に、アルミであるが、非常に安価で可視光の全波長領域に対して反射率が良く、角度依存性も少ない利点がある。次に、銀についてであるが、銀も可視光の全波長領域に対して非常に反射率が高い。最後に、誘電多層膜についてであるが、これは垂直入射に対して非常に高い反射率を有する一方で、高入射角（浅い角度）での入射に対して、反射率が著しく低下するという特性を持つ。KamLAND のバルーン内で発光イベントが起きた場合、ミラーに入射する多くの光は高入射角となるため、我々の実験には適していない。

以上の性質から、非常に安価で反射率が高く、世間でも幅広く応用・研究されており、化学的にも安定なアルミを素材として、研究を進めた。

初めに、二つのサンプルを用意し、空気中での反射率を測定した。用意した2つのサンプルの構造を以下に示す (図 4.13)

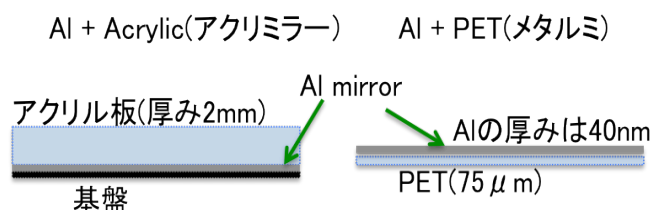


図 4.13: アクリミラーとメタルミの構造

アクリミラーは三菱レイヨン（株）社製の製品で、基板とアクリルでアルミを挟み込むような構造になっている。一方、メタルミは東レ（株）社製の製品で、PET（ポリエチレンテレフタレート）におよそ 40nm のアルミ膜を蒸着したサンプルである。メタルミに対しては、PET を通さず、アルミの界面でのみ反射させて、その反射率を測定した。測定条件を表に示した (表 4.3)。

光源	Xe ランプ
ディテクター	2" PMT
測定波長	200~900nm
入射角	7.5° ~82.5° (7.5° ステップ)
ミラーのサンプル	Acryl+Al(アクリミラー)
ミラーのサンプル	PET+Al(メタルミ-TS75)
リファレンス	測定前後に 5 回ずつの計 10 回

表 4.3: 反射率測定条件・環境

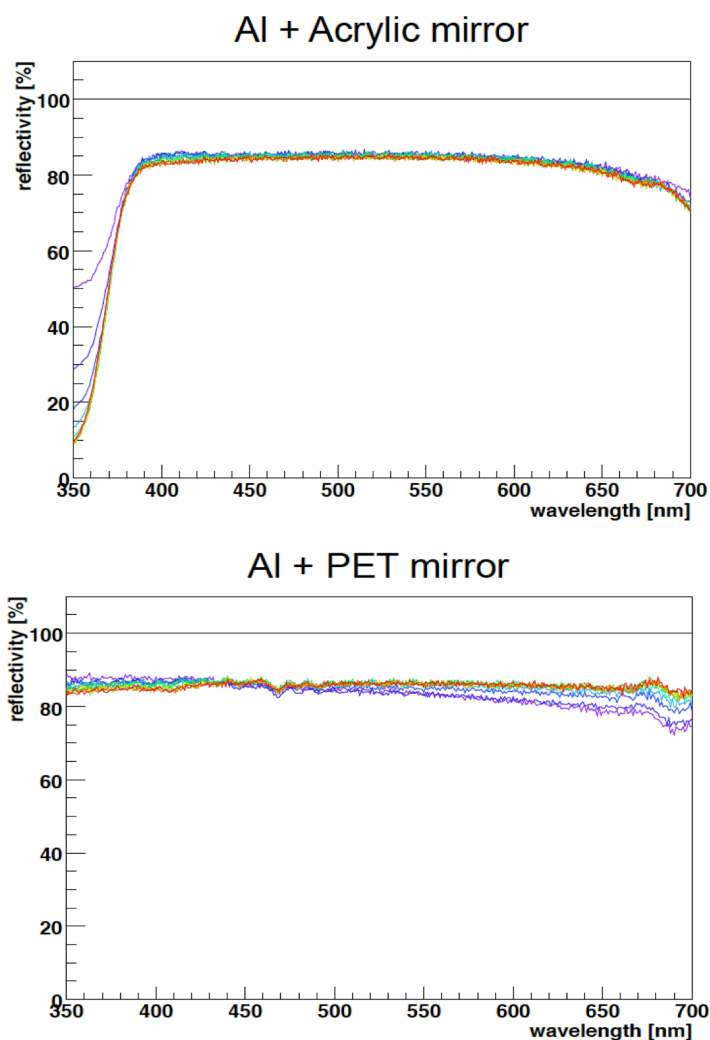


図 4.14: アクリミラーとメタルミの空気中における反射率

その測定結果は図 4.14 のようになった。同様に横軸に波長、縦軸に反射率を取り、比較すると、アクリミラーよりもメタルミの方が反射率が良いという結果になった。アクリルには、紫外線吸収物質が含まれており、この影響で紫外領域の光が吸収されてしまっている。紫外線吸収物質の含まれていないアクリルを使えば、反射率は紫外領域でも向上すると考えられるが、アクリミラーは選定条件のしなやかさをクリアしていない。以上の理由から、素材は PET + Al 蒸着のメタルミに決定した。

ただし、メタルミは東レ（株）社製の平面ミラーの製品である。コーンの形に整形したミラーを大量に用意するためには、専用の鋳型及び蒸着器が必要となる。そこで、PET + Al ミラーの基礎的な性能評価をメタルミで行い、最終的には独自に蒸着・整形したミラーで性能評価を行うこととする。

#### 4.4.3 PET+Al ミラーの液中での反射率

実際に検出器の中にミラー入れる際、ミラーはバッファオイル層で液中に浸ることになる。そこで、ミラーの空気中での反射率だけでなく、オイル中での反射率も測定する必要がある。今回は、バッファオイル層に使用されているパラフィンオイル（ドデカン:イソパラフィン=53:47）と、将来のバッファオイルの候補である LAB（リニアアルキルベンゼン）の 2 つのオイルを用意し、メタルミの液中での反射率を測定した。測定結果と測定条件を示す (図 4.15、図 4.16、表 4.4)。

光源	Xe ランプ
ディテクター	2" PMT
測定波長	300~700nm
入射角	15° ~75° (15° ステップ)
ミラーのサンプル	PET+Al(メタルミ-TS75)
リファレンス	測定前後に 5 回ずつの計 10 回

表 4.4: 反射率測定条件・環境

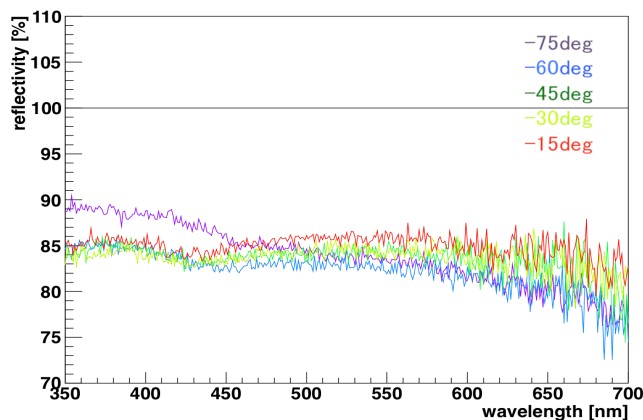


図 4.15: メタルミのパラフィン中における反射率

測定の結果、反射率が全体的に空気中よりも低いことが分かった。400nm の光に対し、低入射角 (15 度~60 度) の場合、空気中では全角度で 87 % 程度の反射率であったが、パラフィンオイル中ではおよそ 85 %、LAB 中ではおよそ 82 % の反射率であった。しかしながら、液中での入射角 75 度の結果を見ると、パラフィンオイル中も LAB 中も 90 % ほどの反射率を示している。このことから、メタルミは大きい入射角 (浅い

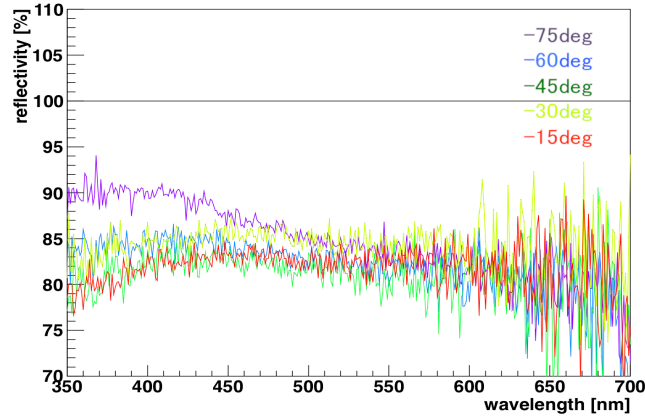


図 4.16: メタルミの LAB 中における反射率

角度) に対しては非常に高い反射率を持つことが分かった。実際に KamLAND にミラーを入れたとを想定すると、多くのミラーは発光点から 8.5m 以上の距離があることになるため、大きい入射角での反射は非常に多く発生することになる。そのため、この効果により集光率が良くなることが考えられる。

そこで、液中で反射率が全体的に下がる効果と、大きい入射角で高い反射率を示す効果が確認された理由を、反射の式による計算で裏付けた。以下に、反射率の計算式を示す。

$$R = \frac{R_s + R_p}{2} \quad (4.1)$$

$$R_s = \frac{(a - \cos \theta)^2 + b^2}{(a + \cos \theta)^2 + b^2} \quad (4.2)$$

$$R_p = R_s \frac{(a - \sin \theta \tan \theta)^2 + b^2}{(a + \sin \theta \cos \theta)^2 + b^2} \quad (4.3)$$

$$a^2 = \frac{1}{2} \left\{ \left[ \gamma^2 + 4 \left( \frac{nk}{n_0} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \gamma \right\} \quad (4.4)$$

$$b^2 = \frac{1}{2} \left\{ \left[ \gamma^2 + 4 \left( \frac{nk}{n_0} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} - \gamma \right\} \quad (4.5)$$

$$\gamma = \left( \frac{n}{n_0} \right)^2 - \left( \frac{k}{n_0} \right)^2 - \sin^2 \theta \quad (4.6)$$

$$\tilde{n} = n - ki \quad (4.7)$$

ここで、 $\theta$  は光の入射角、 $\tilde{n}$  は反射素材の複素屈折率、 $n_0$  は媒質の屈折率、 $R$  は反射率を表す。空気中の  $n=1.0$  とし、パラフィンの屈折率を 1.48 として、横軸に入射

角、縦軸に反射率を取りプロットした。なお、アルミの屈折率は 365nm における複素屈折率から、 $n=0.399, k=4.40$  として計算した。この式から、LAB 中とパラフィンオイル中で反射率が異なっていた理由は、屈折率が原因であると考えられる。空気中とパラフィンオイル中での反射率を波長 365nm において計算した結果を図 4.17、図 4.18 に示す。

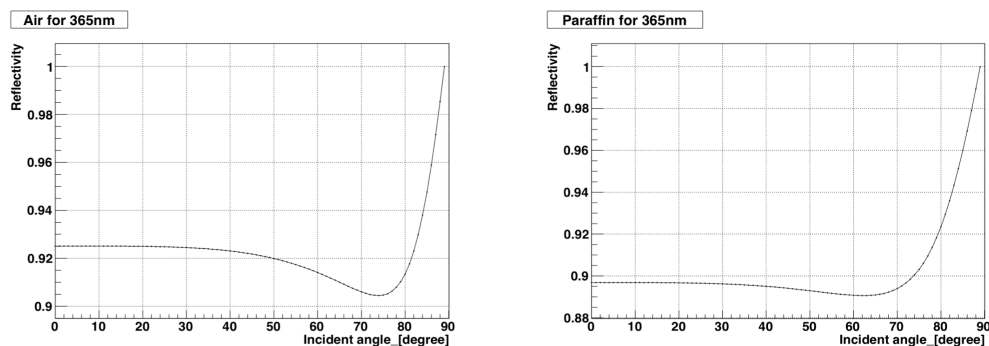


図 4.17: アルミの空気中における反射率の角度依存性      図 4.18: アルミのパラフィン中における反射率の角度依存性

このプロットから、高入射角において反射率が高くなる振る舞いが、空気中とオイル中で異なるという効果を再現できた。また、低入射角においては、液中で反射率が少し低くなる効果も再現できた。ただし、この効果は波長依存性を含んでおり、実験結果では 350~450nm 程度の領域でこの効果が顕著になることがわかっている。KamLAND での発光イベントは、PMT の量子効率や液体シンチレータの発光波長、吸収再発光の効果を考えると、光の波長が 400nm 付近での集光率が重要であるため、このアルミのもつ性質は非常に適している。

#### 4.4.4 PET+Al ミラーの化学的安定性

KamLAND2-Zen は、少なくとも 5 年ほど実験を行う計画である。そのため、ミラーをバッファオイル層で PMT に取り付ける場合、ミラーがオイル中で安定であることは必須条件となる。本研究では、バッファオイルに使用されているパラフィンオイルにメタルミラーをつけ込み、経年劣化の具合を調べた。調べた内容は以下の 2 つについてである。

- ・ミラーの反射率の安定性
- ・ミラーをつけ込んだパラフィンオイルの透過率の変化

反射率の安定性については、恒温槽中でパラフィンオイルに浸し込んだミラーと、

浸し込む前のミラーとで液中の反射率を測定し、比較した。今回の結果は、45℃の恒温槽において、4週間つけ込んだものを測定し、比較した。結果を図 4.19 と図 4.20 に示す。

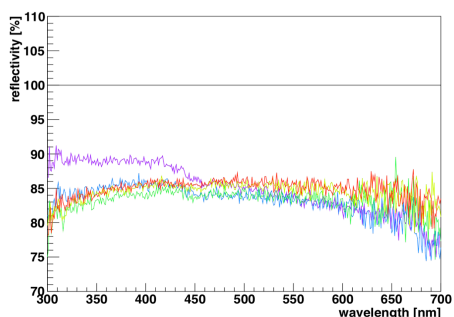


図 4.19: メタルミの反射率

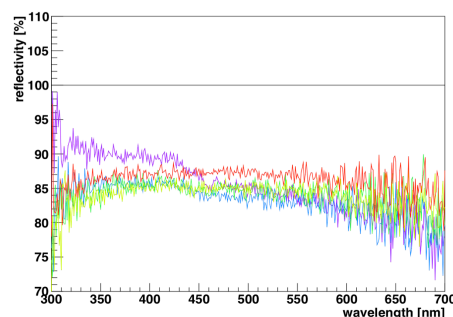


図 4.20: つけ込み後の反射率

結果として、メタルミのオイル中での安定性は非常によく、誤差以上の劣化は見られなかった。恒温槽は 45℃に保たれており、室温を 15℃とすると 30℃ほど高い温度で経年劣化を確かめたことになる。10℃2倍の法則が成り立っていると仮定する(付録を参照のこと)と、30℃高い環境では8倍の加速になるので、4週間の8倍のおよそ8ヶ月相当の安定性を確かめたことになる。目標は最低でも5年であるので、さらに長くパラフィンオイルに浸し込んだミラーで測定する必要がある。また、実際に蒸着して試作したミラーでも、性能評価を行う必要があり、今後の課題として挙げられる。

一方、パラフィンオイルの透過率の測定についてだが、こちらはミラーの溶け出しやPETの溶け出しにより、オイルが汚れていないかどうかを測定で確かめる測定である。バッファオイルの透過率が下がれば、検出器の集光率が下がり、エネルギー分解能に悪影響を及ぼすため、ミラーの溶け出しによる透過率の劣化を調べる必要がある。今回は、10cm×13cmのミラーの試料を用意し、170mlのパラフィンオイルに浸し込んだ。反射率の安定性の測定と同様に、45℃の恒温槽で23日間浸し込んだ後、透過率を測定した。今回も、反射率の経年変化と同様に、10℃2倍の法則が成り立つと仮定している。また、S/V比を計算すると、以下のようになる。ただし、KamLANDは半径9mの球とし、バルーンの大きさを6.5mとした。また、実際に入れるミラーの表面積は、簡単のため半径をウィンストンコーンで仮定した Entrance Radius、高さを Height の円柱として近似した。計算に用いた数値を表 4.5 に示す。

今回の試験でのサンプルの S/V 比が、実際に KamLAND に入れた場合のおよそ 100

	KamLAND	バイアルのサンプル
ミラーの表面積	$1.37 \times 10^7 [\text{cm}^2]$	$130 [\text{cm}^2]$
BO の体積	$1903 [\text{m}^3]$	$170 [\text{cm}^3]$
S/V 比	$0.0072 [\text{cm}^2/\text{cm}^3]$	$0.76 [\text{cm}^2/\text{cm}^3]$

表 4.5: S/V 比の計算

倍程度であることを考えると、50年相当の経年変化を調査したことになる。なお、S/V比とは、溶媒の体積に対する試料の表面積の比であり、溶け出しの効果はこのS/V比に比例する。反射率の時と同様に、浸し込む前後で9cmのパラフィンオイルに対する透過率をダブルビーム型分光光度計にて波長スキャンしながら測定を行い、比較した。結果を図4.21、図4.22に示す。

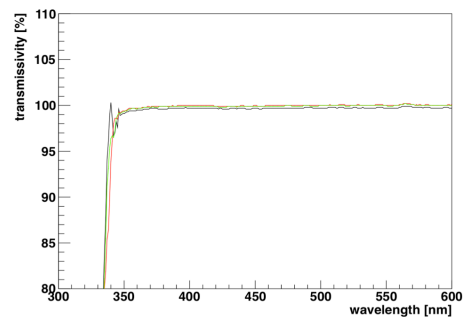
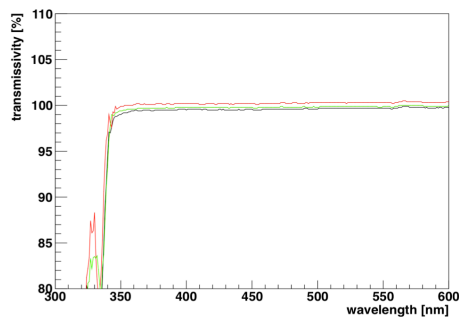


図 4.21: パラフィンオイルの透過率/9cm

図 4.22: つけ込み後の透過率/9cm

横軸は波長、縦軸は透過率を示している。結果、9cmのパラフィンに対する透過率は浸し込みの前後ともに  $99.8 \pm 0.3\%$  となり、50年相当の時間変化の後も、誤差以上の劣化は見られなかった。このことから、透過率に関してはおよそ50年以上の安定性が確認された。ただし、メタルミが安定であっても、PETの厚みや蒸着の条件を変えてコーンを整形することになるため、ミラーの試作品が完成次第、同様の測定する必要がある。



#### 4.4.5 蒸着品の試作

メタルミの性能評価により、ミラーの素材がPET+Alが適していることがわかった。次のステップとしては、独自の蒸着器を用いてPETにアルミを蒸着し、ミラーの試作品を作ることになる。最終的には、コーン型の鋳型を作り、そこにPETを流し込んで整形した後、アルミを蒸着することになるが、まず初めに平面のPET膜にアルミを蒸着して1/3スケールの平面ミラーを作り、その蒸着の具合を確かめた。蒸着器や蒸着技術の提供はCI工業（株）に依頼した。出来上がったサンプルは以下の図4.23のようになった。また、用いた蒸着器を図4.24に示す。



図 4.23: 蒸着器



図 4.24: 1/3 サイズの平面ミラーのサンプル

サンプルを見ると、表面が非常によく仕上がっており、ミラーに映った文字が読み

取れるほどである。このサンプルの蒸着の具合を確かめるため、中央と左右の3点で反射率を測定した。測定角度は45°Cで、空気中で測定した。以下に結果を図4.25に示す。

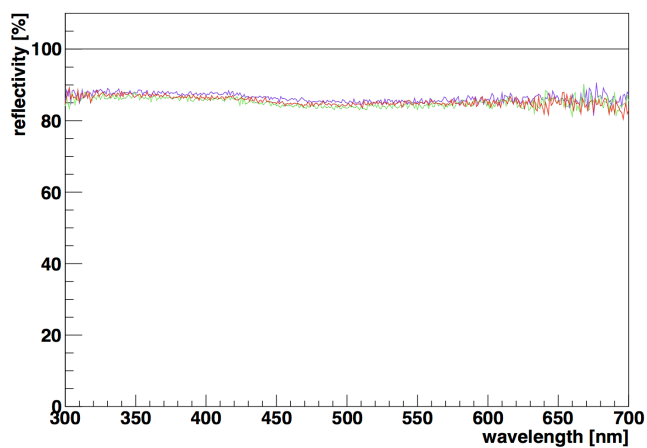


図 4.25: 蒸着サンプルの空気中における反射率

色の違いは場所の違いであるが、3点とも同じように反射率が非常に良く、メタルミ同様、400nm 付近の光に対する反射率は87%程度である。このことから、蒸着が一様になされていることが確認できた。

CI工業（株）の協力で、フルスケールのミラーも試作した。PETの厚みを $500\ \mu\text{m}$ とし、鋳型を用いずに、先の図に示した蒸着器で曲面への蒸着を試みた。Alの厚みは $40\text{nm}$ を目指したものの、一様な仕上がりにはならなかった。曲面への蒸着は難しく、まだ蒸着の条件や方法を改善する必要がある。しかしながら、しなやかさは極めて良好な仕上がりであったため、PETの厚みは $500\ \mu\text{m}$ 程度が適していることがわかった(図 4.26)。

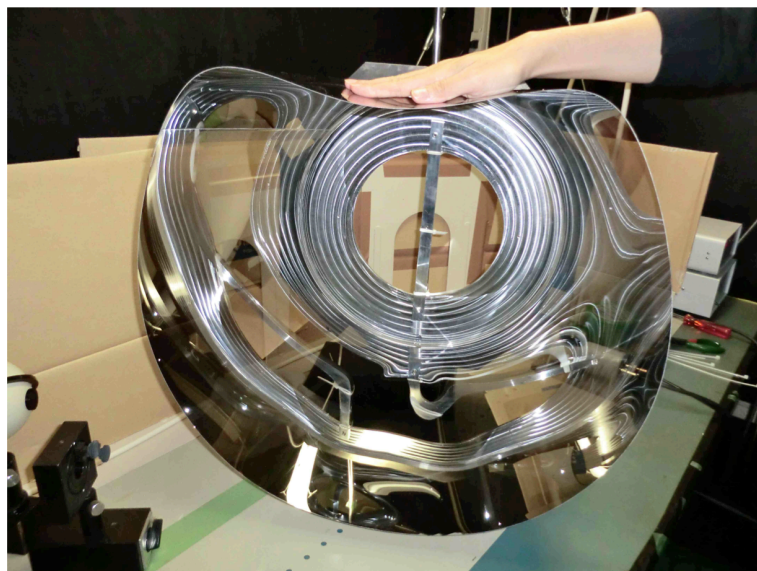


図 4.26: フルスケールミラーの試作

## 第5章 大光量液体シンチレータの開発

### 5.1 研究目的・目標

KamLAND2-Zen の計画では、エネルギー分解能を向上させることが必須である。集光量を増加させる上で、大光量液体シンチレータの開発は非常に重要である。また、現在 KamLAND 内に入っている液体シンチレータの光量は、KamLAND の液体シンチレータの蒸留フェイズやバルーンのインストールの際に不純物が混入し、光量と減衰長が下がっているため、液体シンチレータを交換するだけでも効果はある。現在、世界中の素粒子実験の研究グループにより液体シンチレータの研究はなされており、KamLAND 液体シンチレータよりも発光量の多い液体シンチレータを作ることは可能であることが分かっている。ただし、透過率やコストなどクリアしなければならない問題は多い。本研究では、KamLAND2-Zen の要求を考えながら、大光量液体シンチレータの開発を行った。

### 5.2 液体シンチレータへの要求と素材の選定

開発にあたって、液体シンチレータへの要求は多い。液体シンチレータの発光量が多くと、減衰長が短ければ不適である。また実際に検出器への導入が実現可能かどうかを考えた場合、消防法や予算の都合もあり、発火点やコストに制限がかかる。また、ミニバルーンへのダメージも少ないものを選ばなければならない。求められる性能をまとめると、以下の8項目になる。

- (1) 大光量 > KL 液体シンチレータの 1.5 倍
  - (2) 減衰長 > 10m (400nm 付近に対して)
  - (3) 低コスト
  - (4) 引火点が高いこと
  - (5) 低放射能
  - (6) 密度が大きいこと
  - (7) Xe 溶解度の高さ
  - (8) バルーンへのダメージが小さいこと
- (1) 発光量は集光量に直接的に影響するため、分解能の向上を目指す上で非常に重要

である。SNO+の論文によれば [4]、KamLAND 液体シンチレータよりも光量の多い液体シンチレータの候補がたくさんあることが分かっている。この中から、選定することとした。PC を基準にすると、カムランド液体シンチレータは 60 %の発光量で、LAB 液体シンチレータは 90 %程度の発光量となっている。

(2) 減衰長も、集光量に直接影響する。KamLAND 検出器は大型の装置のため、透過率が悪ければ集光量が減少する。KamLAND の発光イベントは波長 400nm 付近の光として液体シンチレータ中を伝播することになるので、400nm 付近の光に対して、減衰長の長い候補を選定する必要がある。

(3) コストも重要な問題である。

(4) 引火点は、取り扱いの難しさに影響する。引火点が低ければ管理を厳しくする必要が出てくるため、できるだけ引火点が高い方が適している。

(5) 低放射能は、ミラーの開発でも述べたが、こちらはバルーンの中にあるため、条件がミラーより厳しい。具体的には、2章で述べたカムランド液体シンチレータの放射性不純物の含有量が目標となる。

(6) 密度は、この選定において非常に重要である。KamLAND2-Zen では、ミニバルーン内に 1,000kg の Xe を溶かす計画になっている。ミニバルーン内部の液体シンチレータ（以下、Xe-LS）は溶けた Xe の分だけ密度が増加することになるが、内側の液体シンチレータと外側の液体シンチレータで密度差があると、ミニバルーンに圧力が生じて破損する恐れがある。そのため、将来計画では内側の液体シンチレータと外側の液体シンチレータが同じ密度になるように、内側の液体シンチレータにデカンを溶かして調整する必要がある。デカンの密度は  $0.77[g/cm^3]$  程度であるので、これより密度が大きい素材であると都合が良い。

(7)Xe 溶解度は、ミニバルーンの大きさに影響する。溶解度が悪いと、液体シンチレータに目標の量の Xe を溶かす際に、液体シンチレータの体積が大きくなってしまふ。Xe を溶かすと液体シンチレータの透過率が下がることがわかっており、体積が膨れ上がるとその影響は顕著になる。KamLAND-Zen で用いられた液体シンチレータの Xe 溶解度は 3wt %であるので、この数値を目標とする。

(8) バルーンへのダメージは液体シンチレータとフィルムの素材の相性で決まる。バルーンが破損すると実験が成り立たなくなるので、化学的に浸食性の低い素材を液体シンチレータ溶媒の候補として選ぶ必要がある。

本研究では、光量を今の液体シンチレータの 1.5 倍にするという目標を立てている。SNO+の液体シンチレータの発光量の測定結果 (図 5.1) を参考に、候補を選んだ。液体シンチレータへの要求は多いが、本研究では、シンチレータ実験で世界的に広く使

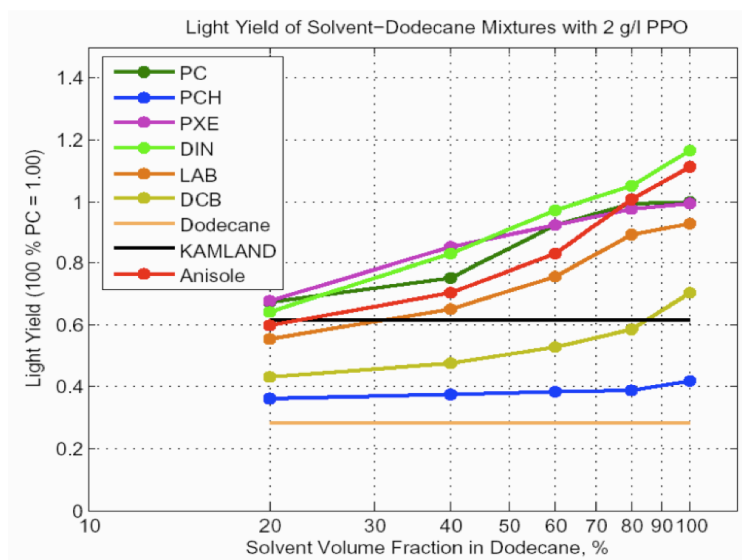


図 5.1: SNO+の測定によるLSの発光量 [4]

われており、よく研究されているリニアアルキルベンゼン (以下 LAB) が要求を満たすことから、LABに着目し、開発を進めた。

### 5.3 リニアアルキルベンゼンの特性

LABとは、ベンゼン環に直鎖のアルキル基 ( $C_nH_{2n+1}$ ) が付加したような構造を持つ有機化合物であり、バッファオイル及び液体シンチレータの溶媒の有力な候補である。一般的にLABのアルキル基の長さは  $n=10\sim 14$  程度であり、多数の種類と異性体を持つ (構造式を図 5.2 に示した)。価格は2013年1月の円相場で1リットル当たり150円弱程度と安く、引火点は  $150\sim 200^\circ C$  程度と高い。密度は組成にもよるが、 $0.86\sim 0.88[g/cm^3]$  程度である。また、LABは化学的に非常に安定で、浸食性も低い。また、PPOを溶かした際に、発光量もPCの0.9倍程度となり、光量が多いことが挙げられる。

ここでは、さらに製法について述べる。文献 [6] によれば、LABの製法はベンゼンをフッ化水素 (HF) や塩化アルミニウム ( $AlCl_3$ ) を触媒としてアルキル化する方法が一般的であったが、ゼオライト触媒による方法が発見された (UOP社のDETAL製法)。海外では、このDETAL製法による製品が多いようである。さて、LABの性質を考えると、既にほとんどの条件をクリアしていることが分かる。しかし、LABは先ほど述べたような生成の過程の違いや原料の種類によって、含まれる不純物質の量が異なり、その不純物質が原因で透過率が下がったり、クエンチングを起こしたりする可能

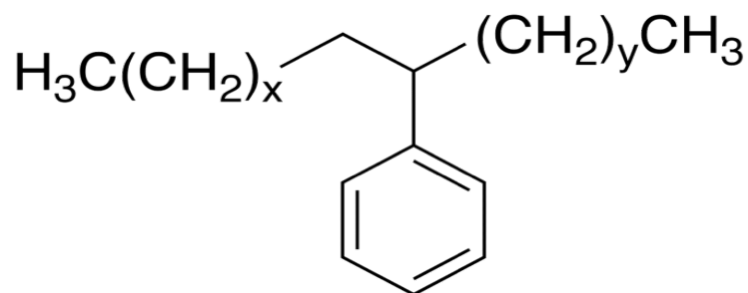


図 5.2: LAB の構造式

性がある。例えば、国内唯一の LAB メーカー JX 社製の LAB である「アルケン L」のサンプルは、波長 400nm の光に対して、9cm あたり 97 % 程度の透過率であり、透過率が低い。透過率の良い LAB を選ぶことも可能ではあるが、放射性不純物の除去も必須となるため、純化の過程が必要になる。そのため、本研究では減衰長 10m を最低目標に、純化による透過率回復を試みた。

## 5.4 純化の方法と減衰長の改善

### 5.4.1 蒸留の原理

LAB の透過率改善のため、蒸留による純化を行った。ここでは、蒸留の一般的な原理と蒸留の必要性について述べる。蒸留とは、混合物間の蒸気圧の差を利用し、混合物の特定の成分を濃縮する方法である。今回、純化のために用いた手法は分留という方法である。分留は、単純に蒸気を取り出して濃縮させる単純蒸留より、分留効率の良い蒸留方法である。単純蒸留では、液体或いは固体を加熱して沸騰させ、蒸気をそのまま取り出して凝縮させる。蒸留によって分離したい物質を A と B とし、A の方が B に比べて沸点が低いとすると、単純蒸留では、A と B の沸点の差が小さいと蒸気を取り出した製品に多くの物質 B が混じるため、単純蒸留を用いるのは A と B の沸点の差が非常に大きいときや、分離の程度をそれほど厳しく求めない場合である。

一方、分留では、沸騰と凝縮のサイクルを次々に繰り返すことで、効率よく物質を分けることができる。図 5.3 で示した、組成  $a_1$  の成分を加熱すると、とある温度  $T_2$  で沸騰するが、そのときの液相の組成は、 $a_2$  で、蒸気の組成は  $a_2'$  である。このときの蒸気は、沸点の低い成分である成分 A に富んでいる。 $a_2$  から、沸点における蒸気の組成と初めの混合液体の沸点の値を知ることができる。さらに、組成が  $a_2$  の蒸気が再び凝縮し、組成が  $a_3$  の凝縮液を再加熱すると、この混合物は  $T_3$  で沸騰して組成  $a_3'$  の蒸気を生じる。当然、 $a_3$  の方がより成分 A に富んでいる。分留では、このサイ

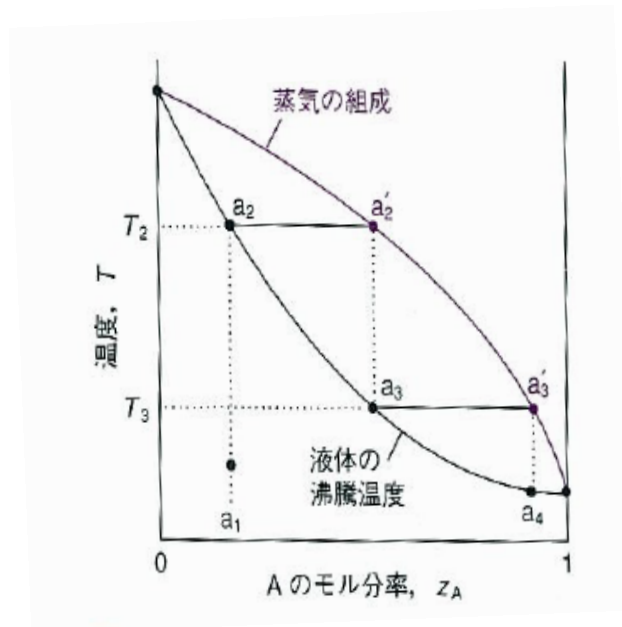


図 5.3: 理想混合物の温度-組成曲線 [22]

クルを繰り返すことで、より純粋な成分 A を留出させる。ある特定の程度にまで 2 成分を分離するために必要なサイクルの数を理論段数と呼ぶ。この理論段数は、Raoult の法則と Dalton の分圧の法則から式変形により表すことができる [20]。A、B の 2 成分からなる液体が蒸気と平衡状態となる理想型を考える。A、B のその平衡状態の温度における蒸気圧を  $P_A$ 、 $P_B$  とし、液相におけるモル分率を  $x_A$ 、 $x_B$ 、蒸気層におけるモル分率を  $y_A$ 、 $y_B$  とする。

$$(P_A + P_B)y_A = P_A x_A \quad (5.1)$$

$$(P_A + P_B)y_B = P_B x_B \quad (5.2)$$

定義より、全圧は  $P_{all} = P_A + P_B$  であり、 $x_A + x_B = 1$ 、 $y_A + y_B = 1$  であるから、上の式の比をとると、

$$\frac{y_A}{1 - y_A} = \frac{P_A}{P_B} \cdot \frac{x_A}{1 - x_A} \quad (5.3)$$

となる。この  $P_A/P_B = \alpha$  を比揮発度という。この時の蒸気を液化すると、沸点の低い成分 A のモル分率は、もとの液相より大きくなる。この気化と液化のサイクルを



n 回繰り返すと、

$$\frac{y_A}{1 - y_A} = \alpha^n \cdot \frac{x_A}{1 - x_A} \quad (5.4)$$

という関係式が得られる。この式の n を理論段数という。n=1 の場合が、単純蒸留に相当する。

従って、蒸留フラスコの上部の蒸留塔に分留カラム（金属製の充填物）を敷き詰め、気相部を冷やして凝縮液の大部分を還流液として蒸留塔内に戻すことで、還流液と蒸気の接触が起こり気化と液化のサイクルが繰り返されて理論段数 n の値を大きくすることができる。

#### 5.4.2 減圧蒸留

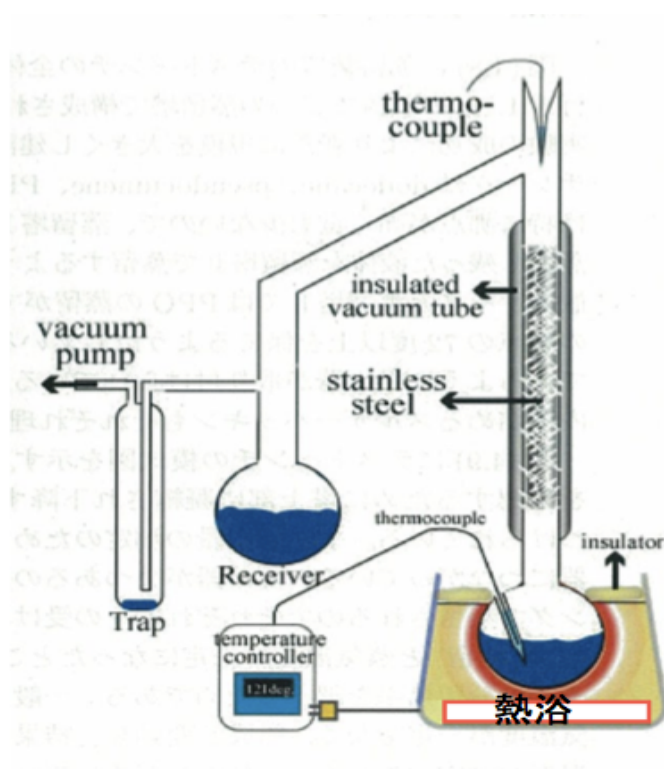


図 5.4: 蒸留装置のセットアップ

本研究で用いた蒸留装置のセットアップを図 5.4 に示す。ガラス製のフラスコに原料となる LAB を入れ、シリコンオイルの熱浴で原料を加熱し、熱で気化させる。気化した LAB により、蒸留装置の内部の温度が十分に高くなると、蒸気が枝分かれする部分まで満たされる。枝分かれしている部分は室温で常に冷やされているため、LAB

はここで油滴に戻り、フラスコに回収される。回収用フラスコは複数個あり、蒸留中の温度の違いで分けられるようになっている。図のように、原料フラスコ内部の底の温度と枝分かれ部分の温度は、熱電対によって表示することが可能である。また、蒸留装置のカラムには、金属の充填物が敷き詰められており、理論段数を増やして蒸留の効率を引き上げるとともに、温度勾配を緩和して突沸を防ぐ役割を果たしている。なお、この蒸留装置の内部は真空ポンプで減圧されており、沸点を下げる役割を担っている。沸点を下げることで、製品内の変質を防ぐとともに、実験の安全性も高めることができる。今回は、表 5.1 示した条件で LAB を蒸留し、製品を沸点の違いで分けた。蒸留時の温度変化の様子を図 5.5 に示す。

蒸留時圧力	0.30[kPa]
脱気	2[hour]
蒸留温度	150[°C]~160[°C]
収率	60~70 %
蒸留時間	4 時間

表 5.1: 減圧蒸留の条件

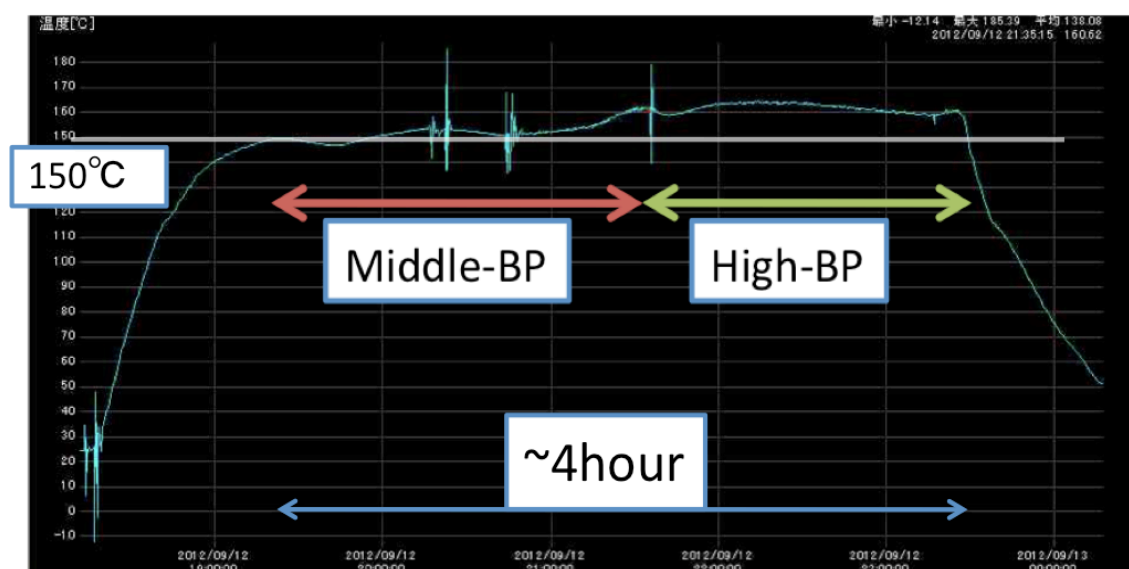


図 5.5: 蒸留中の温度

### 5.4.3 吸着の原理

本研究では、活性アルミナによる吸着を行ったが、ここでは吸着の一般的な原理について述べる。

文献 [24] によれば、一般に、不揮発性の固体に気体を接触させると、定積であれば気体の圧力が低下し、定圧であれば気体の体積が減少する。すなわち、気体の一部が固体に捕らえられる。その後、固体分子の中に入り込む場合を吸収といい、固体分子の表面に捕らえられる場合を吸着という。ここで、吸着する物質を吸着媒、吸着される物質を吸着体という。吸着には二種類の分類がなされており、それぞれ物理吸着と化学吸着と呼ばれている。物理吸着はファンデルワールス (van der Waals) 吸着とも呼ばれ、分子間力による相互作用と同じ原理で、吸着媒と吸着体の結合が発生する。一方、化学吸着は活性化吸着とも呼ばれ、原子価力による相互作用による結合 (共有結合) が発生する現象である。表 5.2 にそれぞれの吸着の特徴を示した。

	物理吸着	化学吸着
吸着原理	凝縮 ( <i>v.d.W</i> 力)	原子価力 (共有結合)
吸着熱	< 10kcal/mole	10~100kcal/mole
選択性	無し	有り
吸着速度	極めて速い	遅い
吸着層	多分子層	一分子層
温度依存性	高温で効率悪化	高温で吸着量増加
可逆性	容易に脱離	脱離が困難

表 5.2: 物理吸着と化学吸着の特徴

### 5.4.4 活性アルミナによる純化

今回は、活性炭と同様の多孔質素材による吸着によって、純化を試みた。使用した吸着剤は活性アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) と呼ばれるカラムクロマトグラフ用粉末である。活性アルミナは、アルミニウム塩類を加熱分解して得られる、 $\gamma$ -アルミナであり、比表面積が大きく、化学的に安定である。また、無極性分子は吸着せず、極性の高い分子だけを選択的に吸着する性質がある [13]。活性アルミナの性質を表 5.3 に示す。

さらに、本研究でのセットアップを示す。100ml ビュレットに石英ウールを敷き詰められており、その上に活性アルミナの層が数十センチほどある。原料は活性アルミナの層で純化されながら通過した後、石英ウールの層を通り、回収される。ここで、石英ウールは活性アルミナが製品に混じることを防ぐために用いた。活性アルミナによる吸着の様子を図 5.6 に示す。この装置を用いて純化を行った。

メーカー	和光純薬工業（株）
化学組成	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 100 %
粒の大きさ	45-150 μ m(平均 75 μ m)
Ph	9.0～11.0

表 5.3: 使用した吸着剤

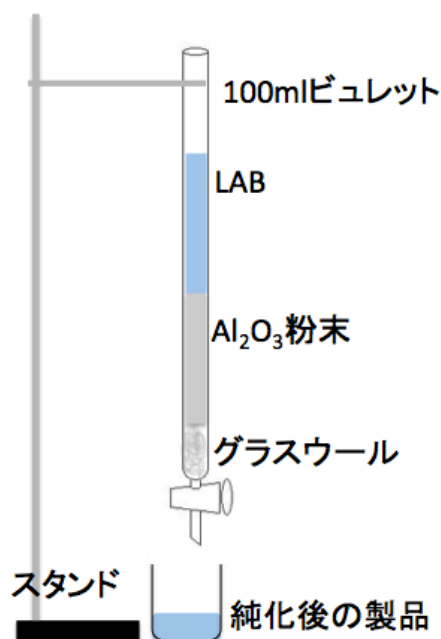


図 5.6: 活性アルミナによる吸着装置

#### 5.4.5 透過率回復

JX社製のLABである、「アルケンL」を2つの方法で純化し、その前後で透過率を比較した。透過率の測定には、日立社製のダブルビーム型分光光度計を用いた。シクロヘキサンでベースラインを取り、1cmのセルと10cmに対する溶媒の透過度を比較することで、9cm分の透過率を測定することができる。スキャンした波長領域は350nm～600nmである。透過率の測定は1サンプルにつき3回行い、その平均を取ることとした。測定後の結果は図5.7のようになった。

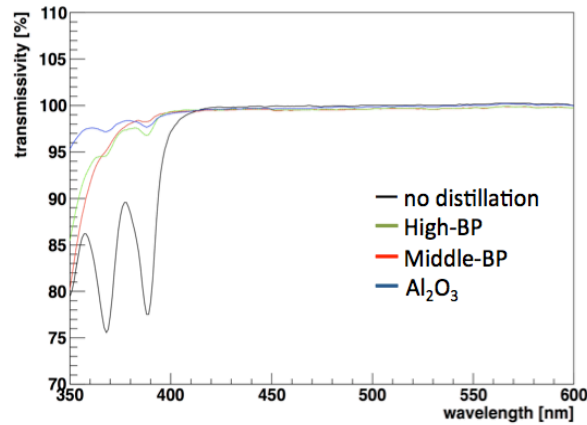


図 5.7: 純化前後の LAB の 9cm に対する透過率

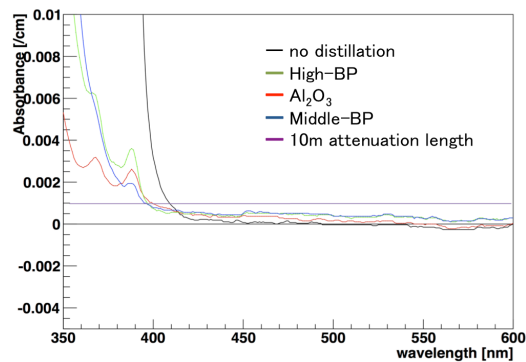


図 5.8: 純化前後の吸光率

アルケン L に含まれていた不純物質による吸収ピークは 2 本あり、それぞれ 368nm と 388nm にピークを持つことが分かった。純化前に比べ、蒸留後・吸着後ともに、透過率が改善していることが確認できた。また、この測定結果を吸光率に変換すると、図 5.8 のようになる。目標であった、400nm における減衰長 10m をクリアすることができた。透過率の測定から、吸着・蒸留ともに、効果的であることが分かった。しかし、減衰長は 10m あれば満足ということではなく、長ければ長いほど集光量が向上して分解能が良くなるため、蒸留や吸着に最適な条件や素材を探す必要がある。

## 5.5 発光量測定

### 5.5.1 発光量測定装置と解析方法

新たに開発する LAB 液体シンチレータの光量は、現カムランド液体シンチレータの 1.5 倍を目標としている。今回、図 5.9 に示したような装置を用いて、発光量を測定した。

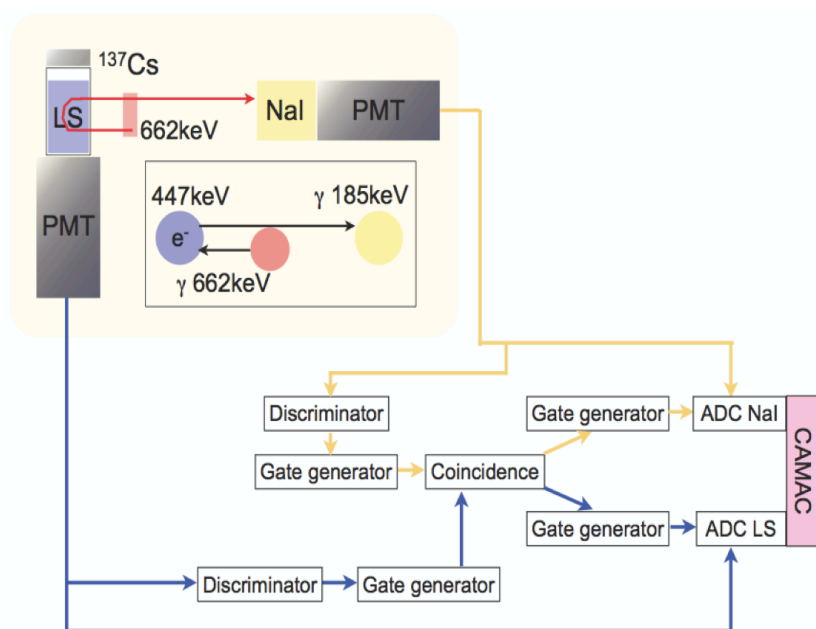


図 5.9: 発光量測定のロジック

ターゲットとなる LS に、 $^{137}\text{Cs}$  からの  $662\text{keV}$  の  $\gamma$  線を当てる。LS の底に PMT が設置されており、LS の発光量を信号として、取り出すことができるようになっている。ただし、これだけでは環境放射線などのアクシデンタルなバックグラウンドと区別がつかず、まだ、線源から LS に落とされたエネルギーも分からない。そこで、 $\gamma$  線の後方散乱を、NaI シンチレータと PMT により検出し、LS について PMT の信号とコインシデンスを取ることで、バックグラウンドを除去し、一定のエネルギーでの発光量を測定することができる。それぞれの PMT からの信号は二つに分けられ、片方は ADC を通して CAMAC に転送される。もう一つはコインシデンス用のゲート生成に使用される。オシロスコープで信号を確認しながらディレイ等を調整して、転送用の信号がゲートにきちんと入るようにする。

データの解析方法を図 5.10 に示した。図 5.10 の左上図が液体シンチレータサンプルの発光イベントの分布、右上図 NaI の発光イベントの分布、右下が LS の発光量の値に対する NaI の発光量の値の分布を示している。解析に必要な図は左上図で、これは横軸に発光量に相当する ADC-channel を取り、縦軸に 2bin ごとのイベント数を取ったもので、ペDESTAL を差し引いた後、LS の発光ピークを fitting することで発光量を比較できる。Mean の値が発光量に相当し、Sigma が標準偏差に相当する。この装置の統計誤差は  $\pm 1\%$  ほどある。再現性のため、測定条件や液体シンチレータのサンプルに対して施した処理は、表 5.4 にある条件で一律に固定した。この条件で発光量の測定を行うこととした。

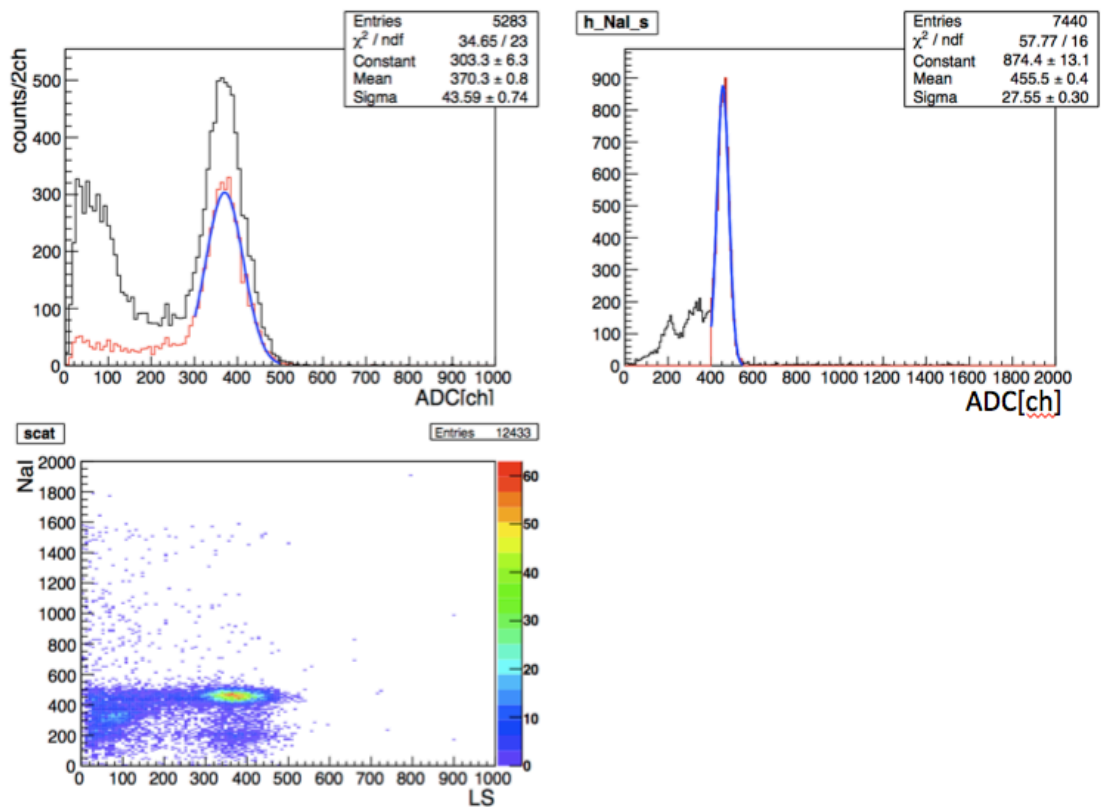


図 5.10: 発光量測定解析

測定時間	7200 秒
サンプル容量	100cc
窒素パージ	<540ml/min にて 3min
PPO 濃度	2.00g/L
装置の系統誤差	<1.5 %

表 5.4: 発光量測定の場合・環境

表 5.4 の条件にある窒素パージについてだが、540ml/min で 3 分というのは、およそ 9 周分に相当する。この条件でパージが十分かを確認するため、流量を 540ml/min に固定し、パージ時間の依存性についても調べた。その結果を表 5.5 にまとめた。

パージ時間 [分]	発光量 (ADC の値)
0	173.8
3	218.4
6	219.4
40	219.7

表 5.5: LS の発光量の窒素パージ時間依存性

測定誤差が 1~1.5 % 程度であることを考えると、窒素パージは 3 分で十分であることが分かる。十分な窒素パージの時間は、540ml/min で 3 分以内であると考えられるが、念のため今後の実験でも、この条件でパージすることとした。

### 5.5.2 発光量の測定結果

先に決めた測定条件に則り、液体シンチレータの発光量を測定した。測定に用いたサンプルは、PC 液体シンチレータ、LAB 液体シンチレータ、カムランド液体シンチレータ、PXE 液体シンチレータ (PXE:1-フェニル-1-キシリルエタン) である。それぞれの溶媒を 100ml を量り取った後、PPO を溶かして液体シンチレータを作り、発光量を測定した。ただし、カムランド液体シンチレータは PPO の濃度が 1.36g/L になるようにした。表 5.6 に液体シンチレータの組成と発光量の結果を示す。



サンプル	組成	発光量 (ADC 値)	発光量 (PC-LS 比)
PC-LS	PC100 % + PPO2.00[g/L]	273.8 ± 0.3	1
LAB-LS	LAB100 % + PPO2.00[g/L]	218.4 ± 0.6	0.80
KL-LS	PC:ドデカン=2:8,+PPO1.36[g/L]	218.9 ± 0.6	0.80
PXE-LS	PXE % + PPO2.00[g/L]	229.1 ± 0.5	0.84

表 5.6: 発光量測定結果

測定の結果、LAB 液体シンチレータはカムランド液体シンチレータと誤差の範囲で同程度の発光量という結果になった。また、PC 液体シンチレータもカムランド液体シンチレータの 1.3 倍程度の発光量にとどまり、SNO+の結果を再現していない。ただし、カムランド液体シンチレータは組成や PPO 濃度の調整で違いがある可能性もあるので、条件が変わると再現しない。したがって、今後は PC 液体シンチレータの発光量を基準とし、液体シンチレータの発光量を比較することとする。LAB 液体シンチレータが PC 液体シンチレータの 0.9 倍になっていないことに着目し、LAB 中の不純物質によるクエンチングの可能性を考えた。

### 5.5.3 純化による発光量回復

LAB は製品の種類により、不純物質の種類や濃度が異なる。また、LAB のアルキル基の長さや異性体の種類によっても、沸点や密度などの性質が異なる。そこで、純度の高い LAB や純化後の LAB を用いて液体シンチレータを作り、発光量測定を行い、発光量の回復を試みた。その結果を表 5.7 にまとめた。なお、高純度のドデシルベンゼンの濃度は 99.6 % 以上である。

液体シンチレータ	発光量 (PC-LS 比)
LAB-LS (活性アルミナ吸着)	0.80
LAB-LS (蒸留-中沸点)	0.76
LAB-LS (蒸留-高沸点)	0.74
ドデシルベンゼン-LS	0.80
ドデシルベンゼン-LS (活性アルミナ吸着 1 回)	0.87
ドデシルベンゼン-LS (活性アルミナ吸着 2 回)	0.86

表 5.7: 発光量測定結果

結果、純粋な LAB の一種であるドデシルベンゼンで作った液体シンチレータの発光量は、PC の 87 % の発光量となり、活性アルミナを用いた純化による発光量回復が

確認できた。ただし、蒸留では逆に光量が下がるという結果になった。これは、蒸留の過程で加熱することにより、変質が起き、クエンチングの原因となる物質が生成された可能性がある。ただし、この変質による変化は、蒸留前にパージをすることや別の方法での純化を行うなど、蒸留条件を変えることで改善する可能性がある。活性アルミナによる吸着を何度行っても発光量がそれ以上回復しないことや、LABの種類によっては効果がないことから、活性アルミナで除去できる不純物質とそうでないものがあることが考えられる。蒸留条件の模索や、他の吸着剤を試すなど、純化の方法を確立することが今後の課題として挙げられる。

## 5.6 ガスクロマトグラフ測定

### 5.6.1 GCによる不純物質の調査結果

透過率や発光量を下げている要因はLABに含まれる不純物質だと考えられる。今回はガスクロマトグラフ(以下GC)を用いて、不純物質の特定を試みた。図5.11はTDC型GC装置の概略図である[19]。

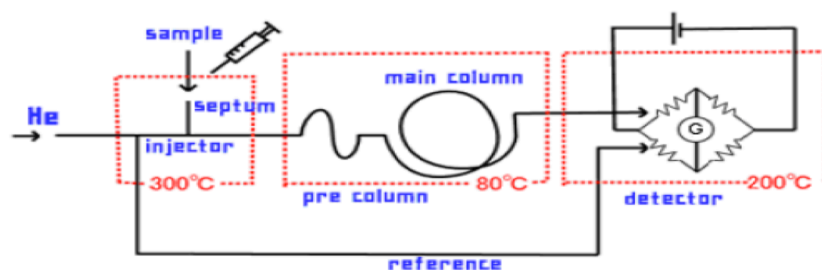


図 5.11: TDC 型ガスクロマトグラフの装置

今回測定に用いたのは、有機化合物の分析に特化したTDC型のGCである。GCとは、物質を加熱によって気化し、キャリアガスで満たされたカラムの中を通し、クロマトグラフィの原理で分離し、その各成分を電気信号によって検出する装置である。カラムの中を通る時間は、物質によって違うので、保持時間と信号の強さから、物質の同定や物質の含有量を求めることができる。この場合、横軸に保持時間、縦軸に電気信号の強度を取ってスペクトルを見ると、含有量に見合ったピーク面積が得られる。また、ガスクロマトグラフとマススペクトロメータを合わせた、GC-MSという手法も存在する。このGC-MSでは、GCでの保持時間ごとに分けた成分を質量分析にかけることで、物質の分子量と含有量分かる。今回LAB中の不純物質を特定するため、GCを用いて、活性アルミナによる吸着前後のLABに対してGC測定を行った。

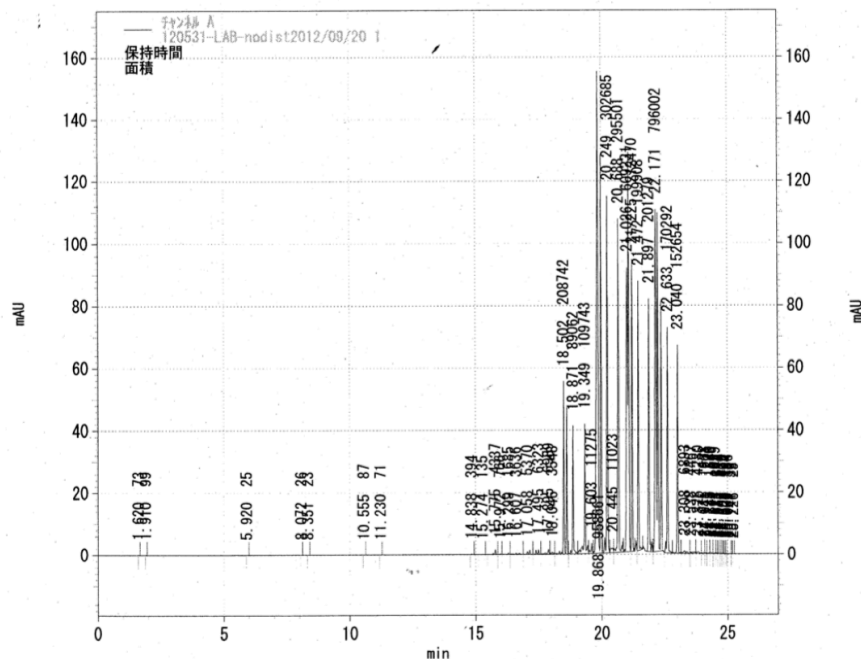


図 5.12: アルケン L の GC 測定

蒸留の前後では、沸点の違いから成分が分かれてしまうため、不純物質が特定できないので、吸着前後での比較を主とした。

LAB の測定結果を図 5.12 に示す。この結果を詳しく見ると、他と比べて値の大きいピークが 19 本あったことから、成分が非常に多いことが確認できた。これは、LAB のアルキル基の C の数が 10~13 程度であることや、異性体の数の多さが原因だと考えられる。この同位体や成分の考察については後述する。不純物の特定のため、この測定を吸着後の LAB に対しても行ったが、原因物質のピークを見つけることはできなかった。そこで、非常に純度の高いドデシルベンゼンを用いて、吸着の前後で違いを GC にて測定した。その結果を図 5.13 と図 5.14 に示す。図 5.13 は吸着前、図 5.14 は吸着後の結果である。横軸は保持時間 [min]、縦軸は信号の強度を示している。メインのピークが一本しかないことから、このドデシルベンゼンは一つの物質で構成されていることがわかる。そのピーク面積を比較することで、不純物質の量を求めることができる。結果、メインのピーク面積%は 99.67 % から 99.86 % にまで増加し、ドデシルベンゼンに含まれる不純物質の量が 0.33 % から 0.14 % にまで減少したことを確認した。

DB-LS が活性アルミナによる吸着で発光量が回復したことと、この GC の結果から、発光量や透過率を下げている原因物質は、活性アルミナの吸着によって落とされた成

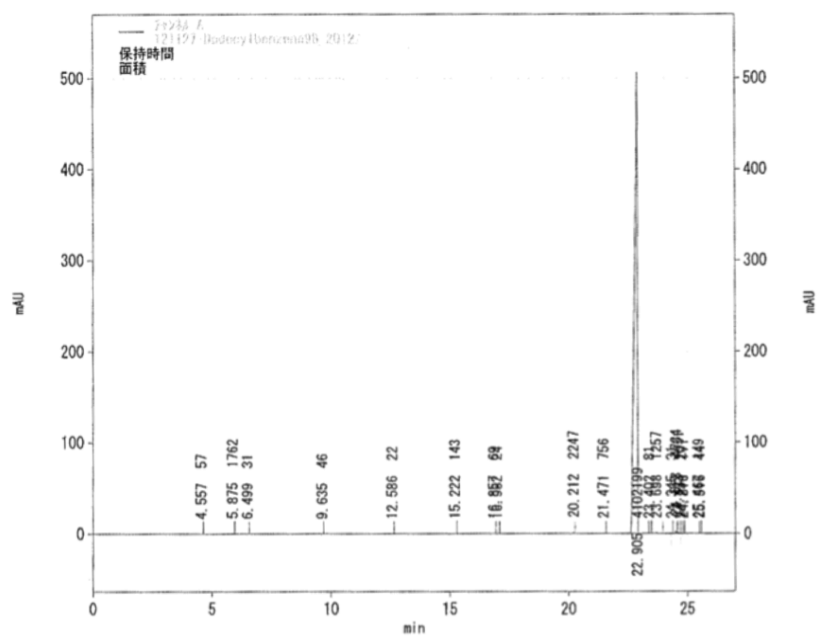


図 5.13: DB の GC 測定 (吸着前)

分である可能性が考えられる。現在は、GC-MS による調査を分析会社に委託し、この原因物質の特定を行っている。

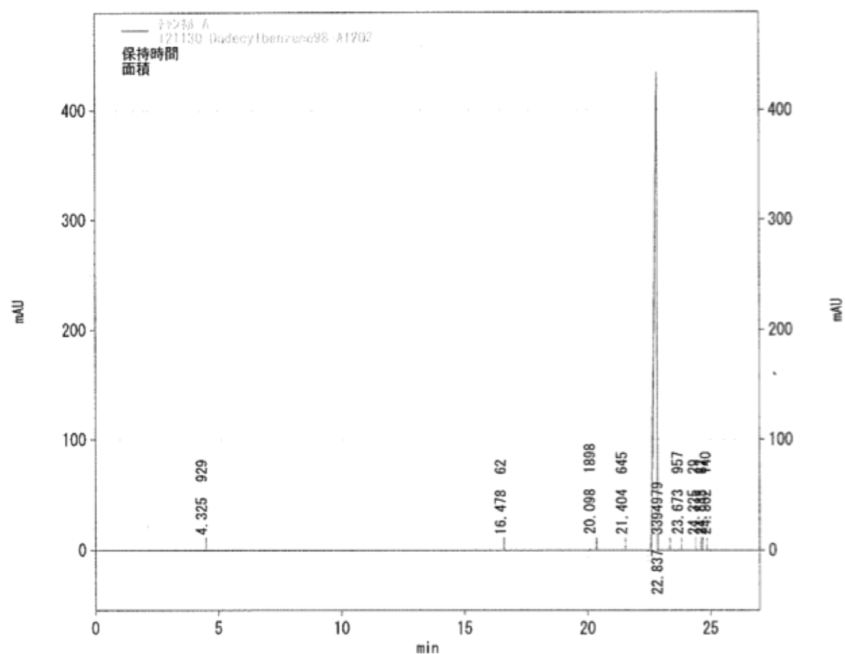


図 5.14: DB の GC 測定 (吸着後)

また、GC-MS による最初の結果を示す。この分析は、三井化学分析センター（株）に依頼した。GC-MS とは、カラムを通る時間（保持時間）ごとに成分を分けて質量分析器（マススペクトロメータ）に通し、各成分の分子量のスペクトルを測定するというものである。アルケン L の吸着前後の各ピークの分子量を測定することができた。結果を図 5.15 と表 5.8 に示す。図 5.15 は、横軸に保持時間、縦軸に強度を取ったスペクトルである。アルケン L には、メインのピークが 19 本あることが分かっていたが、その物質の分子量を求めることができた。

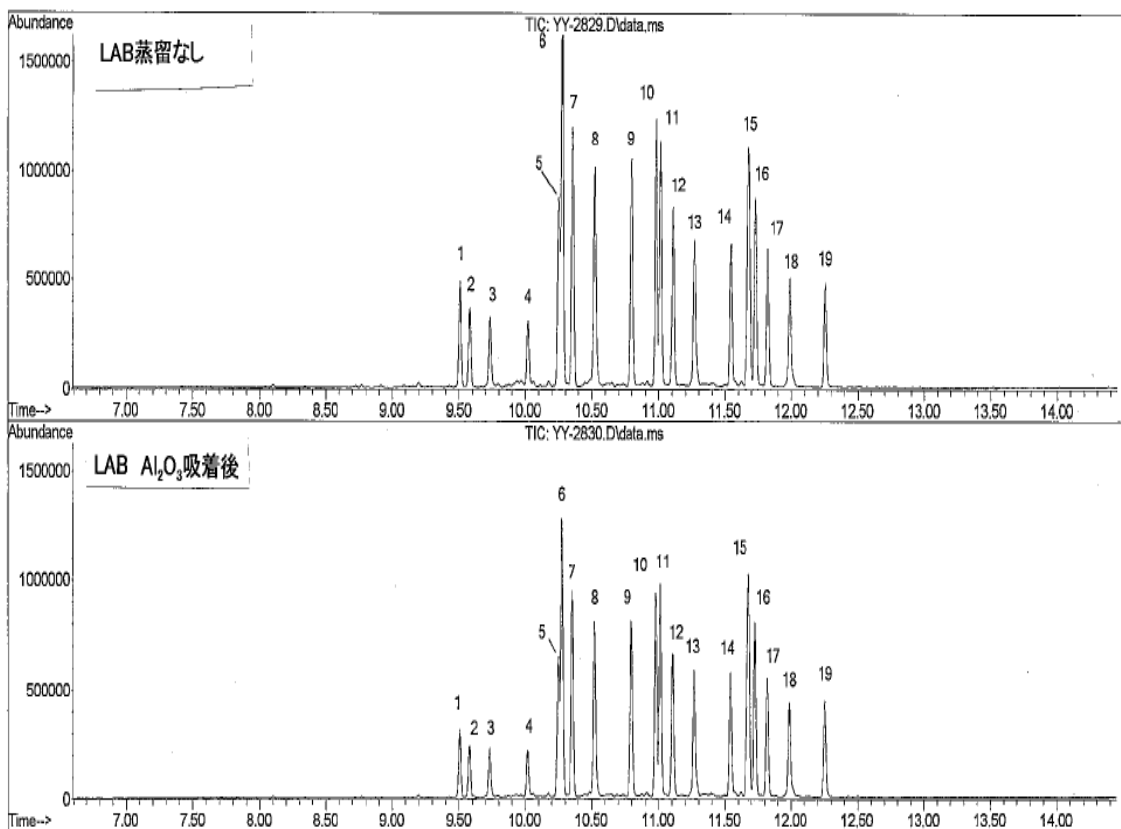


図 5.15: アルケン L の GC-MS 分析結果

LABの一般式は $C_6H_5C_nH_{2n+1}$ と表されることから、表5.8に示された分子量から分子式を求めると、含まれている物質は $C_6H_5C_{10}H_{21}$ 、 $C_6H_5C_{11}H_{23}$ 、 $C_6H_5C_{12}H_{25}$ 、 $C_6H_5C_{13}H_{27}$ の4種類で、それぞれに異性体が4~5ずつあることで19成分を成していることがわかる。

ピーク番号	分子量	組成 (純化前) %	組成 (吸着後) %
1	218	2.9	2.4
2	218	2.3	2.0
3	218	2.1	21.8
4	218	1.8	1.6
5	232	5.1	4.4
6	232	11.0	10.2
7	232	7.7	7.1
8	232	7.4	6.7
9	232	6.7	6.4
10	246	7.3	7.5
11	246	7.1	7.5
12	246	5.0	5.3
13	246	4.6	4.9
14	246	4.4	4.9
15	260	8.7	9.7
16	260	5.5	6.1
17	260	3.8	4.3
18	260	3.5	3.9
19	260	3.1	3.5

表 5.8: アルケン L の GC-MS 分析による分子量分析結果

### 5.6.2 他の研究グループによる GC 調査の結果

文献 [5] によれば、異なる種類の LAB について透過率を測定し、それぞれの不純物質を GC×GC/MS により調べた上で、透過率を落としている不純物質を予想する手法を取っている。4つのサンプルについて透過率を測定した後、その中の2サンプルについて GC×GC/MS により不純物質の種類と含有量を調べ、比較している。彼らが行った透過率測定の結果と、カスクロマトグラフの比較の結果を、図 5.16 及び図 5.17 に示す。透過率測定の結果は、横軸に波長、縦軸に各サンプルごとの吸光度を取ったものである。彼らは、このサンプルのうち、NJ12-1 と canada1 という LAB について GC 測定を行った。GC の結果の図 5.17 は、横軸に保持時間、縦軸に強度を取っている。

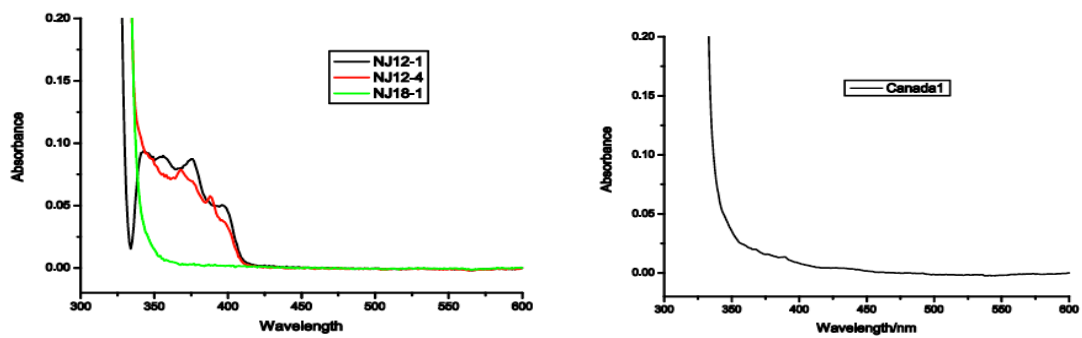


図 5.16: LAB の透過率測定

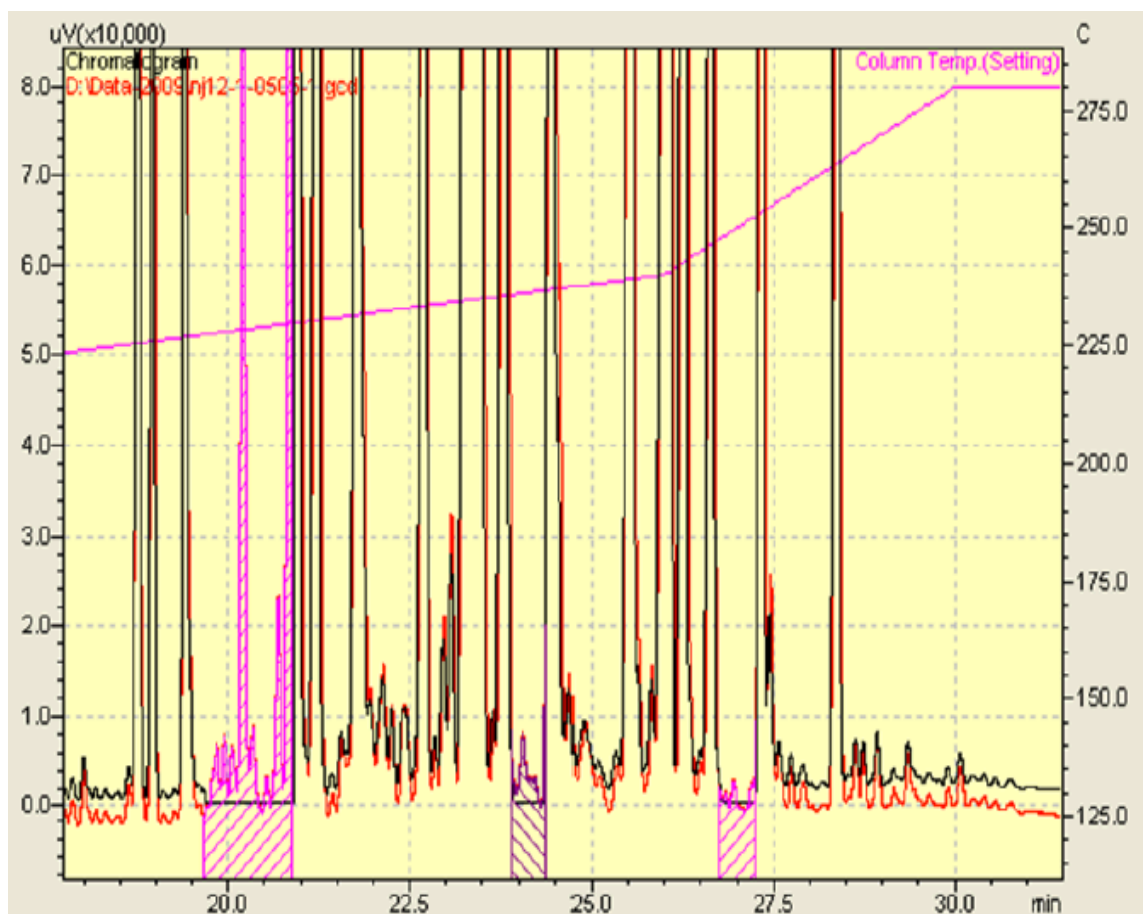


図 5.17: GC による比較



我々の結果と同様に LAB の各ピークが見えているが、紫色で示した部分は NJ12-1 が豊富に含んでいる不純物質である。彼らはこの紫色のピークに含まれる物質の分子量を GC×GC/MS により調べ、吸光の原因となっている不純物質が以下の4つの物質ではないかと疑っている (図 5.18)。

I:  $C_{20}H_{15}ClN_2O_3$

II:  $C_{14}H_{19}NOS$

III:  $C_{19}H_{17}N_3S$

IV:  $C_{11}H_{13}NOS$

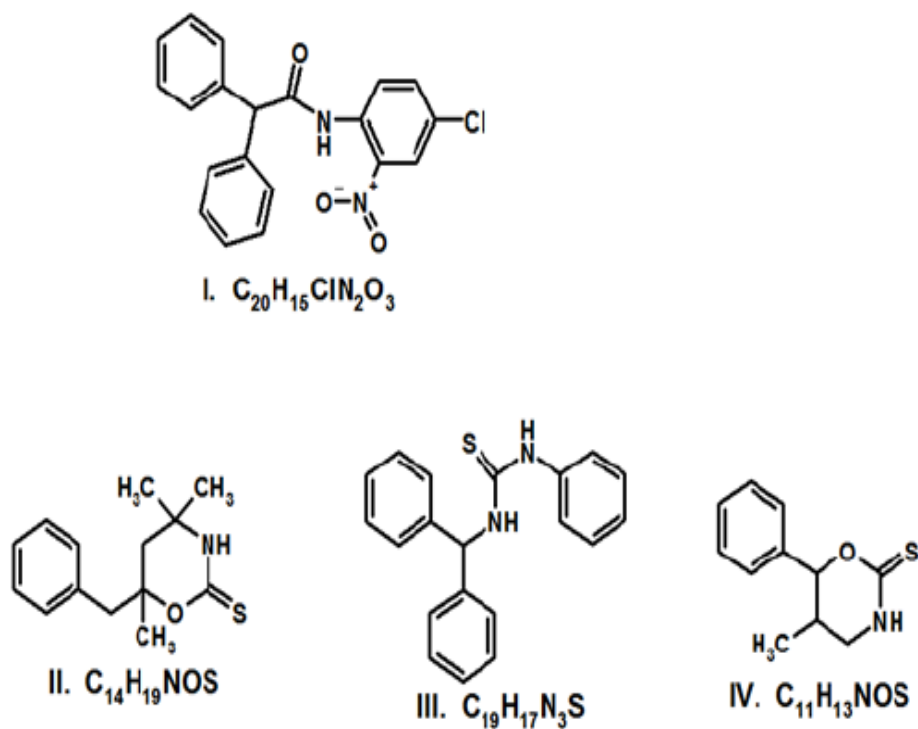


図 5.18: 予想される不純物質の構造式

## 5.7 デカンの混合比依存性

### 5.7.1 デカンの混合による発光量変化

実際に KamLAND2-Zen の液体シンチレータとして LAB 液体シンチレータを使う場合、デカンを混ぜて密度調整を行うことになる。したがって、LAB にデカンを混ぜた場合の密度の変化や、発光量の変化を調べる必要がある。まず始めに、デカンの混合比を変えた LAB 液体シンチレータを 6 種類作り、発光量を測定した。発光量測定の条件は、LAB 液体シンチレータの発光量測定と同様である。発光量のデカン依存性の測定は、以下の手順で行った。

- (1) サンプルの合計容量が 100ml となるように、LAB とデカンを 100ml メスシリンダーで量り取った後、バイアルに入れて混ぜ合わせる。
- (2) PPO を 0.200g 精確に量り取り、バイアルに加える。
- (3) 540ml/min で 3 分ほど窒素パージを行う。
- (4) バイアルの側面と底面をエタノールで拭き、個性がないことを確認する。
- (5) 発光量測定装置にて測定後、解析を行う。

結果は表 5.9 のようになった。ただし、今回の測定における ADC チャンネルの誤差は± 2.8~2.9 程度である。

LAB:N10	発光量 (ADC)	発光量 (PC 比)
10:0	218.4	0.80
8:2	206.8	0.76
6:4	202.9	0.74
4:6	191.9	0.70
2:8	177.2	0.65
0:10	125.9	0.46

表 5.9: LAB 液体シンチレータの発光量のデカン混合比依存性

この表をもとに図にしたものが、図 5.19 である。横軸に LAB の混合比をとり、縦軸に発光量をとった。結果から、ドデシルベンゼンの混合比が増えると発光量が増加することが分かった。グラフが指数関数的な振る舞いを見せているので、LAB の混合比が極端に低いと、著しく光量が下がる。しかし、LAB の混合比を 4 割にしても、LAB 混合比が 10 割の液体シンチレータの 88 % 程度の光量を維持できるので、幅広く密度調整が可能であることが期待される。KamLAND-Zen では、光量の低下を PPO の濃

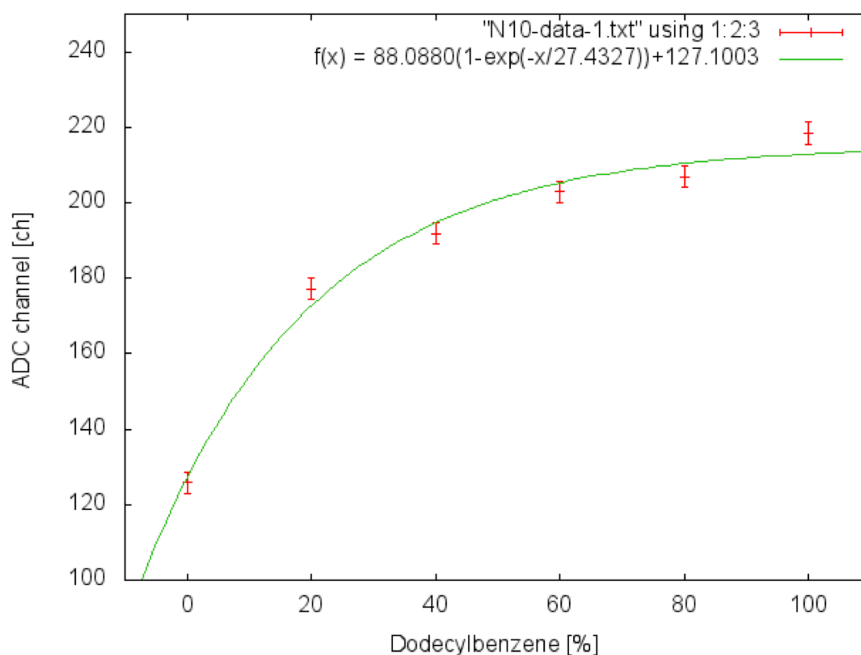


図 5.19: LAB 液体シンチレータの発光量のデカン混合比依存性

度を増やすことにより回復できたことから、PPO 濃度による発光量回復が、今後の課題である。また、実際に液体シンチレータを作る際は、この関係性と密度及び、Xe 溶解度などを考える必要がある。ミニバルーンの外側の液体シンチレータを LAB100 %液体シンチレータで作ると仮定し、LAB の Xe 溶解度を 3wt % としてミニバルーンの内側の液体シンチレータを作るとすると、バルーンの内側と外側の密度差の制限から、内側の液体シンチレータの LAB:デカン比はおよそ 8:2 となる。この結果から、その場合の内側の液体シンチレータの光量は、LAB100 %液体シンチレータの 95 %程度の光量となり、大光量が維持できることが分かった。

### 5.7.2 密度変化

ミニバルーンの内側と外側の液体シンチレータを LAB を軸に作ることを考えると、内側の液体シンチレータには大量の Xe を溶かすことになる。内側と外側の密度差があるとバルーンに負担がかかり、破損するおそれがあるため、内側と外側の密度がほぼ同一になるように調整しなければならない。そこで、デカンを LAB に混ぜた時、密度は混合比とどのような関係にあるのか調べる必要がある。今回は、ドデシルベンゼンにデカンを混ぜた際の密度について、測定を行った。バイアルに体積が 100ml となるように、100ml メスシリンダーを用いてデカンと LAB を加えた。体積比を変化させ

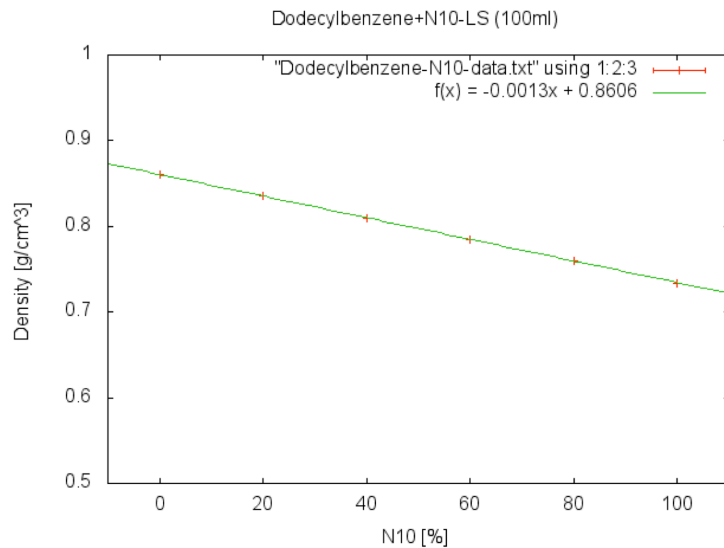


図 5.20: LAB の密度のデカン混合比依存性

ながら、6点データを取り、一次関数で回帰直線を引いた。なお、混合比の精確さについては、100ml メスシリンダーのメモリの1/10まで読んでいるため、0.1%程度の誤差を含む。密度測定に用いたのは、アントンパール社製DMA4500Mであり、測定装置による系統誤差は $4.5 \times 10^{-6} [g/cm^3]$ 程度である。この装置は温度調整機能も備えており、 $15.01 \pm 0.0045 [^{\circ}C]$ における密度を測定した。その結果を図5.20と表5.10示す。

LAB:N10	密度 [ $g/cm^3$ ]
10:0	0.860430
8:2	0.836098
6:4	0.810256
4:6	0.784698
2:8	0.759652
0:10	0.733998

表 5.10: 混合比と密度

結果を見ると、非常にきれいな近似直線が引けており、デカンの混合比と密度が線形であることが確認できた。ただし、この値は $15.0^{\circ}C$ における密度であり、いずれは実際の検出器の温度である $11^{\circ}C$ 程度でも同様の測定を行う必要がある。デカンとLABの比を調整することにより、 $0.860 \sim 0.734 [g/cm^3]$ の間であれば密度を調整でき

ることがわかった。LABにデカンを40～60%溶かしても、光量の変化はほとんど見られなかった。しかし、LABの混合比が40%以下になると、著しく光量が下がってしまうことがわかった。KamLAND-Zenの液体シンチレータの研究では、PPOの濃度を増やすことで発光量が回復できることが分かっている。ただし、PPOを溶かすと透過率が下がるという問題もある。今後の課題として、PPO濃度を変化させて、透過率を測定しながらデカンを混ぜたLAB液体シンチレータの光量回復を試みることが挙げられる。

## 5.8 屈折率測定

液体シンチレータの屈折率は、開発にあたり必要なパラメータである。屈折率により、バルーンの界面での反射や透過などの効果が左右されるからである。従って、本研究ではLABの屈折率の測定も行った。測定に用いた機器と測定条件については、表5.11に示した。

屈折率測定装置	アッペ式屈折計(アタゴ社製)
光源	分光蛍光光度計 F-2000(日立社製)
測定波長	410～600[nm](10nm ステップ)
測定温度	12.0 ± 0.1[°C]
更正用光源	ナトリウム D 線 (589nm)
サンプル	アルケン L(JX 社製 LAB)
測定回数	3 回

表 5.11: 屈折率測定の測定環境・条件

### 測定の方法

- 1, 温度が 12.0 ± 0.1 °Cであることを確認したら光源からの光を屈折率計に通し、値を小数点以下 4 桁まで読み取り、記録する。
- 2, 波長を変えながら 600～410nm まで読み取り、これを 3 回繰り返す。
- 3, 測定した 3 回のデータを平均し、以下の式の W に測定波長 [nm]、M に読み取った値を代入して計算し、屈折率 N を求める。ただし、63 はラジアンではなく角度 [°] である。

$$V = W/1000 \quad (5.5)$$

$$A = 2.9157717 \quad (5.6)$$

$$B = -1.00817/100 \quad (5.7)$$

$$C = 3.409894/100 \quad (5.8)$$

$$D = 2.1965014 \quad (5.9)$$

$$E = -1.2386955/10000 \quad (5.10)$$

$$F = 1.5766843/100000 \quad (5.11)$$

$$P^2 = A + BV^2 + \frac{C}{V^2} + \frac{D}{V^4} + \frac{E}{V^6} + \frac{F}{V^8} \quad (5.12)$$

$$G = 1.7398/P \quad (5.13)$$

$$H = M/1.7398 \quad (5.14)$$

$$N = P \sin\{63 - \arcsin[G \sin(63 - \arcsin H)]\} \quad (5.15)$$

この測定方法で得られた屈折率を図 5.21 に示す。

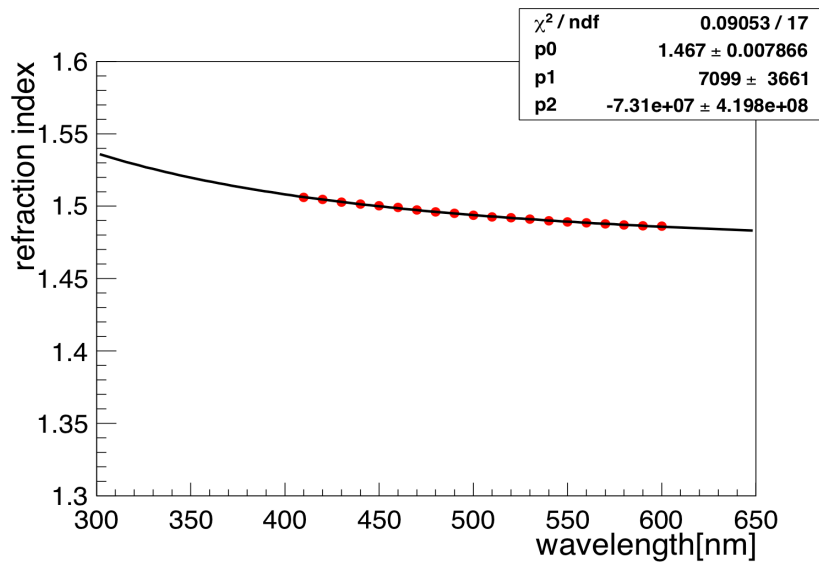


図 5.21: LAB の屈折率の波長依存性

図 5.21 は、横軸に波長、縦軸に屈折率を取りプロットした結果である。ただし、肉眼での測定のため、400nm における屈折率の測定が非常に困難であることから、fitting によって 400nm における屈折率を求めた。このとき用いた関数は二次関数であるが、LAB の屈折率は数十 nm 程度の波長変化に対してはほとんど線形的な振る舞いを見せている。400nm における屈折率を求めると、おおよそ 1.51 となり、過去に KamLAND の学生が測定したパラフィンの屈折率 (1.453) や現在の液体シンチレータ (1.460) よりも高い値となった。

## 第6章 結論と今後の課題

まず、ミラーの開発について述べる。高反射率で化学的安定性がよく、フレキシブルである必要があるというミラーへの要求から、素材はPET + アルミに決定した。反射率測定から、PET + アルミのミラーは、液中も85%以上の反射率をもつことがわかった。また、恒温槽での加速試験の結果から、PET + アルミのミラーは液中及び空气中で非常に安定であることもわかった。試作に関して述べると、平面への蒸着品の仕上がりも極めて良好で、今のところ開発は順調に進んでいる。課題として曲面への一様な蒸着と鑄型の製作が残されているものの、蒸着条件の最適化や試作品の性能評価がなされれば、製作することが可能である。

次に大光量液体シンチレータの開発について述べる。安価な素材かつ、大光量液体シンチレータを実現でき、密度も高く、引火点の低いという要求から、素材をリニアルキルベンゼン (LAB) に決定した。しかし、透過率測定及び発光量測定により、LABには原料や生成の過程で含まれる不純物質があり、透過率や発光量に悪影響を及ぼすことがわかった。ガスクロマトグラフ (GC) による不純物の同定も試みたが、不純物質が極微量であったため、GCでは不純物質を同定できなかった。不純物質に対して、本研究ではLABを蒸留と、活性アルミナによる吸着の2つの方法で純化することを試みた。その結果、その2つの方法で400nmに対する減衰長 $> 10\text{m}$ を達成することができた。また、純粋なLABを選び、純化することで、発光量もPCの87%まで回復させることができた。このことから、LABの透過率や発光量に悪影響を及ぼす不純物質を除去することが可能であることがわかった。しかし、まだ除去しきれていない不純物質もあるため、LABの種類の中から不純物質が少ないものを選定し、様々な純化の方法を試しながらその方法を確立することが課題として残っている。この課題をクリアすることができれば、テストベンチを用いて、蒸留を行うこととなる。

ミラー開発では、現在のところ一様に反射率85%を過程すれば1.7倍程度の集光率増加となったが、液中での高入射角における高反射率を考えると、目標である1.8倍の集光率増加が達成できる可能性がある。大光量液体シンチレータの開発では、純化により今のところKamLAND液体シンチレータの1.1倍程度の光量の液体シンチレータを作ることに成功している。この二つのアップデートにより、現時点で少なくとも2倍程度の集光量増加が見込まれる。

## 付録 Arrhenius の法則

本研究では、加速試験における劣化の具合について、温度が 10 °C 上昇すると 2 倍の劣化になると仮定したが、この付録でその詳細について説明する。

Arrhenius の式によれば、ある物質の反応における速度定数を  $k$ 、気体定数を  $R$ 、絶対温度を  $T$ 、活性化エネルギーを  $E_a$  とすると、以下の関係が成り立つ [23]。

$$k = A \exp \left\{ \frac{-E_a}{RT} \right\} \quad (1)$$

ただし、 $A$  は頻度因子と呼ばれる定数である。温度  $T_1$  における速度定数が  $k_1$ 、 $T_2$  における寿命が  $k_2$  であるとするとき、その寿命の比を取って式を整理すると、

$$\frac{k_2}{k_1} = \exp \left\{ \frac{E_a}{RT_1} - \frac{E_a}{RT_2} \right\} \quad (2)$$

$$\ln \frac{k_2}{k_1} = \frac{E_a}{RT_1} - \frac{E_a}{RT_2} \quad (3)$$

$$\ln \frac{k_2}{k_1} = \frac{E_a}{T_1 T_2 R} (T_2 - T_1) \quad (4)$$

となる。経験的に  $\frac{E_a}{T_1 T_2 R} \simeq \frac{\ln 2}{10}$  となる物質が多いことから、この値を代入し、式を整理すると、

$$\frac{k_2}{k_1} = 2^{\frac{T_2 - T_1}{10}} \quad (5)$$

となり、 $T_1 - T_2$  が 10 °C 増える毎に 2 倍の劣化が表れる計算になる。しかし、この計算通りに 10 °C で 2 倍となるためには、 $\frac{E_a}{T_1 T_2 R} \simeq \frac{\ln 2}{10}$  となるような活性化エネルギーを持つことが必要条件である。現実の化学反応では、活性化エネルギーがどのような値を持つかによって、劣化の具合が 2 倍に届かなかつたり、2 倍以上になってしまつたりすることがあるため、常温で劣化の具合を調べたサンプルを用意し、恒温槽で加速試験を行ったサンプルの劣化の具合と比較することで、何倍程度の加速になっているのかを調べる必要がある。

本研究で用いたサンプルは、加速試験を行ったサンプルも、常温 (15 °C) で劣化させたサンプルも、期間中に誤差の範囲以上の劣化が見られなかつたため、30 °C で何倍の加速になっているのかを調べるができなかつた。そうした場合は、長い時間をかけて劣化させるか、或いは、より高温の環境で劣化させたものを比較することで調べることが可能であると考えられる。



## 参考文献

- [1] 戸塚 洋二 「ニュートリノによる素粒子物理」 日本物理学会誌  
vol.58,No.5,2003
- [2] 中畑 雅行「太陽ニュートリノの観測の現状と将来」 日本物理学会誌  
vol.58,No.5,2003
- [3] 鈴木 厚人 「原子炉反電子ニュートリノ消失現象の検出」 日本物理学会誌  
vol.58,No.5,2003
- [4] SNO+ Collaboration Mark Chen, etal. "Scintillation and Light Sensitive Detectors - I"
- [5] P.Huang et al. "Study of attenuation length of linear alkyl benzene as LS solvent" 2010 JINST 5 P08007
- [6] J.L.Berna, et al. Growth and Developments in Linear Alkylbenzene Technologies:Thirty Years of Innovation and More to Come(1994)
- [7] "Light Concentrators for Borexino and CTF", L. Oberauer,etal. ucl.Instrum.Meth. A530 (2004) 453-462, 2003
- [8] KamLAND Collaboration. Phys.Rev.Lett. 94.081801(2005)
- [9] H.V. KLAPDOR-KLEINGROTHOUS et al. Phy.Lett A Vol.21, No 20 (2006)
- [10] KamLAND-Zen Collaboration. arXiv:1211.3863(2012)
- [11] M.Auger et al.(EXO Collaboration), Phys.Rev.Lett.109,032505(2012)
- [12] J.Bringer et al.(Particle Data Group), PR D86,010001(2012)(URL:  
<http://pdg.lbl.gov>)
- [13] UOP.co LLC, UOP4291 1204A5C(2004)
- [14] 花籠 紘 修士論文「KamLAND用高位置分解能イメージング検出器の開発」  
東北大学 平成 24 年度

- [15] 大木 歩 修士論文「新トリガーによる KamLAND-Zen 実験での  $^{10}\text{C}$  バックグラウンド除去」 東北大学 平成 24 年度
- [16] 中田 貴広 修士論文「KamLAND-Zen 用 mini-balloon の開発研究」 東北大学 平成 23 年度
- [17] 加藤 領 修士論文「ニュートリノレス 2 重ベータ崩壊探索のための液体シンチレータ開発」 東北大学 平成 23 年度
- [18] 大野 洋平 修士論文「ニュートリノレス二重  $\beta$  崩壊探索のための  $^{10}\text{C}$  タギングによるバックグラウンド提言低減」 東北大学 平成 23 年度
- [19] 藪本 洋 修士論文「ニュートリノレス二重  $\beta$  崩壊探索のためのキセノン含有液体シンチレータの特性研究」 東北大学 平成 23 年度
- [20] 竹内 慎 修士論文「 $^7\text{Be}$  太陽ニュートリノ検出のための KamLAND 液体シンチレータの蒸留精製法の開発研究」 東北大学 平成 17 年度
- [21] ヘクト光学 I 著：Eugene Hecht 訳：尾崎義治・朝倉利光
- [22] 物理化学（上）第 8 版 著：Peter Atkins・Julio de Paula 訳：千原秀昭・中村亘男, 2009
- [23] 物理化学（下）第 8 版 著：Peter Atkins・Julio de Paula 訳：千原秀昭・中村亘男, 2009
- [24] 反応速度学 著：桑田敬治・廣田鋼蔵, 1975

## 謝辞

本修士論文の執筆にあたり、多くの方々からご指導・ご協力いただきました。井上先生には、講義や発表練習だけでなく進路の相談でもお世話になりました。白井先生は、入学前の研究室訪問から修士論文提出・発表まで、重要な場面でいつもお世話になりました。古賀さんには、神岡での作業やGSAで熱い指導をして下さいました。三井先生には、ゼミやミーティング、発表練習などでいつも的確な指摘をしていただき、自分の詰めの甘さを見直すきっかけを与えて下さいました。清水先生には、研究生生活で大変ご迷惑をお掛けしましたが、僕のような人間を最後まで面倒みていただき、誠に感謝しております。池田さんは、ゼミやわからない計算で悩んでいるところをいつも丁寧に教えて下さいました。飛行機隣の席で脱いすみませんでした。丸藤さんには、研究ではあまり接する機会がありませんでしたが、バルーン作りや飲み会の席でお世話になりました。玉江さんには、ネットワークの接続やSCPなどの基本的な環境設定などを親身になって教えて下さいました。大谷さんや本木さんは1年の間でしたが、神岡での蒸留作業やミーティングなどで時に楽しく時に厳しく指導して下さいました。山田さん、上島さん、吉田齊さん、健悟さん、澤田さんには、神岡での作業やシフトでお世話になりました。石徹白さんは、ゼミや修論で行き詰まった際、様々なアプローチで助言して下さいました。渡辺さんと寺島さんには、解析やプログラムなどでいつも丁寧に教えて下さいました。竹本さんと吉田学立さんには、いつも悪戯をされていましたが、僕にとっては困ったときに相談に乗って下さる優しい先輩方でした。Benda、Colinとは拙い英語での会話になってしまいましたが、その会話がとても勉強になりましたし、研究に対する熱意には驚かされました。同期の大木君、松田さん、花籠君、澤村君は、講義や修論だけでなく出張やさまざまな行事でも楽しい時間を共有させて下さいました。後輩の石川君、江澤君、大木君、鎌田君、松田君、山内さん、立花君、小原君、林田君、坂井君、寺尾君、板垣君のおかげで、ゼミや様々な行事で楽しく過ごすことができました。その他にも、技管の中嶋さん、鈴木さん、根本さん、高山さんは、実験や測定などで困ったときにいつも助けて下さいました。また、佐々木さん、大塚さん、遠藤さん、遊佐さん、三浦さんには、事務関係でいつもお世話になりました。他にも、卒業された先輩方（特に加藤さん）や、事務の方、その他大勢の方々に支えられ、この論文を書くことができました。心から感謝致します。皆さん、本当にありがとうございました。