

修士論文

KamLANDにおける  
太陽ニュートリノ観測に向けた  
液体シンチレータの純化  
- 蒸留法による鉛除去の研究 -

東北大学大学院理学研究科  
物理学専攻

小川 桃世

平成17年



## 概要

太陽の活動はその中心における熱核融合反応によって維持されている。この核融合反応に伴いニュートリノ（太陽ニュートリノ）が生成される。太陽ニュートリノは太陽内部におけるエネルギー生成、中心温度、電子密度などの様々な情報をリアルタイムに提供してくれるので太陽ニュートリノを観測することにより、これら太陽内部の情報を地球上において得ることができる。

現在のところ、太陽ニュートリノの観測は、寄与の小さい $^8\text{B}$ ニュートリノの観測が中心となっており、寄与の大きい $^7\text{Be}$ ニュートリノなどの分離検出が望まれている。低エネルギーニュートリノ観測を行う KamLAND 実験では、次期計画として $^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測を目指している。KamLAND のシンチレーターは液液抽出法によりすでに世界最高レベルに純化されているものの、 $^{210}\text{Pb}$ を親核にもつ $^{210}\text{Bi}$ 、 $^{210}\text{Po}$ 、および $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{40}\text{K}$ などの放射性不純物に由来するバックグラウンドが $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測領域を覆ってしまっている状況にある。 $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測のためには、 $^{210}\text{Pb}$ を5桁程度の削減をしなければならない。

本研究ではこれらの放射性不純物のうち、 $^{210}\text{Pb}$ に焦点を当て、蒸留法による削減を目指す。蒸留法においては、その除去率が除去目的成分の存在形態にはよらず、沸点のみに依存するので、従来の液液抽出法、吸着法といった手法では除去できなかった鉛の除去に効果的であると期待できる。

本研究における蒸留法の開発において、液体シンチレーターの各成分ごとの蒸留では最大 $2.9 \times 10^{-5}$ の除去率が達成できることを確認した。最大除去率が $\sim 10^{-5}$ で止まる理由としては、低沸点の有機鉛化合物の存在が考えられた。混合物である液体シンチレーターの蒸留においては、 $10^{-3}$ 程度の除去率しか得ることができなかったが、これは有機鉛化合物の沸点が、液体シンチレーターの蒸留温度帯に存在しているためと考えられた。本研究において、混合物の蒸留温度と除去率の関係を詳細に調べることにより、混合物の蒸留においても、温度の精密制御によって、純物質と同じ程度の除去率を達成できる可能性を示した。さらに本研究において、蒸留前後でシンチレーターの発光特性に変化がないことを確認した。これらにより、 $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測に必要な鉛の除去が蒸留法により実現できることを示した。



# 目次

第1章	序章	1
第2章	太陽ニュートリノ問題	4
2.1	星の進化の理論とニュートリノ	4
2.2	標準太陽模型- Solar Standard Model	4
2.3	太陽ニュートリノ	5
2.3.1	ニュートリノ	7
2.3.2	ニュートリノ振動	8
2.4	太陽ニュートリノ問題	11
2.4.1	太陽ニュートリノの反応プロセス	11
2.4.2	太陽ニュートリノ問題	12
2.5	KamLAND 太陽ニュートリノ観測の意義	14
2.5.1	KamLAND での低エネルギー太陽ニュートリノ観測	14
第3章	KamLAND における太陽ニュートリノ観測	20
3.1	KamLAND 検出器	20
3.1.1	検出器本体	21
3.1.2	液体シンチレーター	22
3.1.3	光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube:PMT)	23
3.1.4	エレクトロニクス・トリガー	25
3.1.5	純化装置	26
3.2	KamLAND のにおける太陽ニュートリノ観測	27
3.2.1	KamLAND における反応プロセス	27
3.2.2	期待される信号 スペクトル	28
3.3	現在のバックグラウンドと将来の目標値	30
3.3.1	現在のバックグラウンド	30
3.3.2	$^{210}\text{Pb}$	32
3.3.3	$^{85}\text{Kr}$	32
3.3.4	$^{40}\text{K}$	33
3.3.5	その他	34
3.3.6	将来のバックグラウンドアクティビティ - 純化での削減目標	39
第4章	蒸留による鉛除去法の開発	40
4.1	蒸留法	40
4.1.1	液液抽出と蒸留法	40

4.1.2	蒸留で想定される問題点	41
4.2	実験原理	43
4.2.1	液体シンチレーター中での鉛の形態	44
4.3	蒸留原理	44
4.3.1	蒸留の原理	45
4.3.2	減圧下での物質の沸点	46
4.4	装置	47
4.4.1	蒸留装置	47
4.4.2	バブリング装置	48
4.4.3	成分分析装置	50
4.5	測定方法	52
4.6	蒸留による鉛除去	55
4.6.1	純物質の単純蒸留による鉛除去	55
4.6.2	純物質の複数回蒸留による鉛除去	56
4.6.3	除去率と蒸留回数（理論段）の関係	58
4.6.4	混合物の単純蒸留による鉛除去	58
4.6.5	混合蒸留における除去率の温度依存の検証	62
4.6.6	大規模ガラス蒸留装置: テストベンチ	63
4.6.7	実験結果の実機への反映	67
4.7	まとめ	68
<b>第5章</b>	<b>液体シンチレーター性能への蒸留の影響の評価</b>	<b>69</b>
5.1	発光現象	69
5.2	評価方法	70
5.3	発光量の測定	71
5.3.1	測定原理	71
5.3.2	後方散乱	71
5.4	加熱・蒸留実験	72
5.4.1	液体シンチレーターの加熱処理:発光量の測定	72
5.4.2	液体シンチレーターの加熱処理:発光スペクトルの測定	74
5.4.3	PPOの純物質での蒸留	77
5.4.4	液体シンチレーターの蒸留	80
5.5	結論	81
5.6	長期安定性	81
5.6.1	実験方法	81
5.6.2	結果	82
5.7	まとめ—液体シンチレーターの評価	82
<b>第6章</b>	<b>まとめと今後の課題</b>	<b>85</b>
6.1	まとめ	85
6.2	今後の課題	86
6.2.1	放射性鉛の除去	86

6.2.2	液体シンチレーターの性能評価 . . . . .	86
6.3	純化後の KamLAND への影響 . . . . .	86
6.4	将来計画：蒸留設備 . . . . .	87
6.4.1	純化装置 . . . . .	87
6.4.2	蒸留装置 . . . . .	89
6.4.3	スケジュール . . . . .	90
付録 A	バブリング装置 . . . . .	91
A.0.4	PPO 用バブリング装置 . . . . .	93
付録 B	クエンチング除去方法 . . . . .	96
付録 C	有機鉛化合物 . . . . .	99

# 目 次

2.1	クーロン障壁	5
2.2	pp 連鎖と CNO サイクル	6
2.3	pp 連鎖と CNO サイクルのエネルギー生成比と温度の相関	7
2.4	電子ニュートリノの生存確率	10
2.5	太陽内での電子の数密度	10
2.6	$\nu_e - e$ 散乱	11
2.7	原子核によるニュートリノ捕獲反応	12
2.8	太陽ニュートリノスペクトラムと各実験のエネルギー閾値	13
2.9	SSM からの太陽ニュートリノ理論値と実験値との比較	13
2.10	ニュートリノ振動解	15
2.11	ニュートリノ振動解	16
2.12	太陽ニュートリノスペクトラムと KamLAND における閾値	17
2.13	太陽の内部での各ニュートリノの生成	18
3.1	KamLAND 検出器	20
3.2	KamLAND 検出器	21
3.3	液体シンチレーターの構成物質	23
3.4	KamLAND に取り付けられている PMT	23
3.5	17 インチ PMT の 1p.e イベント	24
3.6	KamLAND でのトリガー回路	25
3.7	KamLAND 純化装置	26
3.8	$\nu_e - e$ 散乱	27
3.9	イベントと位置の相関	30
3.10	現在の KamLAND の低エネルギー領域でのスペクトル	31
3.11	Po210 のカウントレート	31
3.12	$^{85}\text{Kr}$ の崩壊図	32
3.13	$^{40}\text{K}$ の崩壊図	33
3.14	有効体積とバックグラウンドスペクトルの相関	33
3.15	有効体積とイベントレートの相関	34
3.16	$^{214}\text{Bi}$ - $^{214}\text{Po}$ の遅延同時計測	35
3.17	$^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測	36
3.18	CNO、pep ニュートリノ	38
3.19	純化目標値達成後の KamLAND の低エネルギー領域でのスペクトル	39
4.1	溶存酸素濃度が高い状態での加熱した液体シンチレーター	42



4.2	U 系列 $^{210}\text{Pb}$ . . . . .	43
4.3	U 系列 $^{214}\text{Pb}$ . . . . .	43
4.4	Th 系列 $^{212}\text{Pb}$ . . . . .	43
4.5	$\alpha$ 崩壊後の鉛の形態 . . . . .	44
4.6	凝縮曲線 . . . . .	46
4.7	大規模蒸留装置で使用している充填物 . . . . .	47
4.8	Antonie Equation . . . . .	48
4.9	蒸留装置 . . . . .	48
4.10	バブリング装置の構成 . . . . .	49
4.11	密度計 . . . . .	50
4.12	密度計での PPO 測定 . . . . .	50
4.13	ガスクロマトグラフィー . . . . .	51
4.14	ガスクロマトグラフィーでの PPO の測定 . . . . .	51
4.15	遅延同時計測の測定系 . . . . .	52
4.16	先発信号と遅延信号 . . . . .	53
4.17	先発信号と遅延信号の時間差 . . . . .	53
4.18	$^{212}\text{Po}$ からのカウントレートを $^{212}\text{Pb}$ の崩壊曲線でフィットした図 . . . . .	54
4.19	純物質での 1 回の蒸留操作での鉛の除去効果 . . . . .	56
4.20	NP での複数回の蒸留操作での鉛の除去効果 . . . . .	57
4.21	小規模装置での NP の複数回蒸留の結果と大規模装置の結果 . . . . .	59
4.22	混合蒸留での温度変化 . . . . .	60
4.23	液体シンチレーターの連続蒸留の手順 . . . . .	61
4.24	混合物の 1 回の蒸留操作での鉛の除去効果 . . . . .	61
4.25	混合蒸留によるサンプル採取の温度帯 . . . . .	63
4.26	混合蒸留による温度帯別除去率のグラフ . . . . .	64
4.27	混合物の温度帯別除去率 . . . . .	64
4.28	テストベンチ . . . . .	66
4.29	ドデカンの複数回蒸留の結果 . . . . .	67
4.30	KamLAND の低エネルギー領域のスペクトラム . . . . .	68
5.1	エネルギー移行過程におけるクエンチング . . . . .	70
5.2	後方散乱のスペクトル . . . . .	72
5.3	後方散乱の回路 . . . . .	72
5.4	加熱装置 . . . . .	73
5.5	溶存酸素を変化させた時の加熱後の発光量の変化 . . . . .	74
5.6	分光蛍光光度計 . . . . .	75
5.7	液体シンチレーターを 110°C と 120°C で加熱した後の発光スペクトルの変化 . . . . .	76
5.8	液体シンチレーターを 110°C と 120°C で加熱した後の発光スペクトルのレファレンスとの比 . . . . .	76
5.9	純物質 PPO を蒸留したときの発光量の変化 . . . . .	78
5.10	純物質 PPO を蒸留したときの発光スペクトルの変化 . . . . .	79
5.11	純物質 PPO を蒸留したときの発光スペクトルの変化 . . . . .	79

5.12	液体シンチレーターを蒸留したときの発光量の変化	81
5.13	蒸留試料の発光量長期安定性	83
5.14	加熱前と後の透過度%/9cmの結果	84
5.15	吸光光度計	84
6.1	実験より得られた除去率から得られた KamLAND 低エネルギー領域のスペクトル	85
6.2	純化装置	88
6.3	蒸留塔	89
6.4	スケジュール	90
A.1	アラバマ大学のバブリング装置	92
A.2	金属材料研究所のバブリング装置	92
A.3	PPO バブリング装置	93
A.4	U 系列	94
A.5	Th 系列	95
B.1	酸素クエンチング	97
B.2	溶存酸素の緩和曲線	98
C.1	有機鉛化合物の構造	100

# 表目次

2.1	pp 連鎖により生成されるニュートリノ	7
2.2	CNO サイクルにより生成されるニュートリノ	7
2.3	太陽ニュートリノ実験の反応とそのエネルギー閾値、観測値（誤差は統計誤差、系統誤差の順に表記）と SSM による理論値と観測値との比	12
3.1	KamLAND の液体シンチレーター成分の U、Th、K の含有量（ICPMS により測定） [13]	26
3.2	液体シンチレーター内の各原子数	28
3.3	SSM から予想されるイベントレート	29
3.4	$^{214}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$ 同時遅延計測のイベントセレクション	35
3.5	$^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$ 同時遅延計測のイベントセレクション	36
3.6	低エネルギー領域でバックグラウンドを形成する原子破碎反応	37
3.7	現在の KamLAND でのバックグラウンドの値と純化目標値	39
4.1	液液抽出法と蒸留法の比較	41
4.2	液体シンチレーター構成成分の温度に関する注意点	41
4.3	予想される有機鉛化合物	45
4.4	Antonie Equation の係数	47
4.5	小規模ガラス蒸留装置	49
4.6	バブリング装置ごとのアクティビティ	49
4.7	イベントセレクション	52
4.8	実験条件	55
4.9	実験条件	57
4.10	理論段と蒸留による除去率	58
4.11	実験条件	59
4.12	実験条件	61
4.13	実験条件	62
4.14	サンプル条件: 採集したサンプル + 添加したサンプル = (PC=50[mℓ]) + (NP=50[mℓ])	63
4.15	実験による最大除去率を達成した時の、1 日あたりのイベントレート	68
5.1	液体シンチレーターの加熱処理での実験条件	73
5.2	分光蛍光光度計の仕様と設定値	75
5.3	PPO の純物質での蒸留実験条件	77
5.4	液体シンチレーターでの蒸留実験条件	80
5.5	サンプルの PPO の量と発光量	80

6.1	小規模ガラス蒸留装置	89
A.1	Th 線源	91
B.1	溶存酸素メーターの仕様	97
C.1	有機鉛化合物 $PbR_4$ において R がすべて同じもの	101
C.2	有機鉛化合物 $PbR_4$ において R がすべて同じでないもの	101

# 第1章 序章

ニュートリノは1930年代にボーア (N.Bohr) とパウリ (W.Pauli) らによってその存在が予言されてからおよそ30年間まったく未知の粒子であった。1956年にライネス (Reines)、コーワン (Cowan) により原子炉からのニュートリノの検出に初めて成功した。そして1968年から始まったデービス (R.Davis) らの塩素による太陽ニュートリノ観測実験は、また新たな問題を提起した。それは実験結果から得られたニュートリノの捕獲率と標準太陽模型 (SSM) [1] から予想される値との間に大きなずれが存在することであり、これが太陽ニュートリノ問題である。SSMが間違っているのか、それとも実験に不備があるのか、もしくは標準理論である素粒子物理学に欠陥があるのか？様々な予測がなされ、多くの検証が行われた。SSMの観点からは、日震学、実際の太陽の測定値を用いたシミュレーションなどから検証が行われたが、ニュートリノ量以外の不定性は見受けられなかった。一方太陽ニュートリノ実験によるニュートリノフラックスの観測値は、塩素実験に続いてSAGE、GALLEX [2]、GNOによるGa実験やカミオカンデの電子散乱のチェレンコフ光を用いた実験により、それぞれ独立に出された。その結果、実験によらず太陽ニュートリノの観測値とSSMの想定値とのずれは決定的なものとなった。この問題を解決する最も有力な解釈は、有限質量をもつニュートリノがニュートリノ振動を引き起こしているというものであった。1998年にスーパーカミオカンデにより、ニュートリノ振動を支持する結果が得られ、2002年のKamLANDの結果から、非常に広い範囲に広がっていたニュートリノ振動の混合解はLMAのみに絞られた。また同年にSNOの全種類のニュートリノの観測結果から、太陽ニュートリノが異なる種類のニュートリノに変化していることが確認され、ニュートリノ振動はいよいよ真実味を帯びてきた。そして2004年KamLANDによりニュートリノ振動が直接観測されるに至り、30年来未解決であった太陽ニュートリノ問題は解決に至った。

しかし太陽内部 (SSM) の精密検証には、これまで行われた太陽ニュートリノ実験だけでは不十分である。現在リアルタイム観測により検出されている太陽ニュートリノは $^8\text{B}$ ニュートリノのみである。 $^8\text{B}$ ニュートリノは非常に高いエネルギーを持ち、他の種類のニュートリノに比べ観測が容易であるが、太陽からの寄与が0.02%と非常に少なく、太陽内部の温度に強い相関を持つため不定性が大きい。SSMの精密検証においては、pp連鎖の初期の反応であり寄与が大きく不定性の少ないpp、 $^7\text{Be}$ ニュートリノといった1MeV以下の低エネルギーのニュートリノを検出することが重要である。これらの低エネルギーのニュートリノはすでに塩素やガリウム実験などにより検出されているが、分離して検出されたことはないため、実験での誤差は大きく、十分なSSMの検証が行えないでいる。また低エネルギー領域の観測では、太陽のもう1つの核融合反応であるCNOサイクルからのニュートリノの観測も期待される。このニュートリノの分離検出はSSMの検証だけでなく、天文学にとって興味深いものであり、pp、 $^7\text{Be}$ ニュートリノと共にリアルタイム検出器での観測が長年待ち望まれている。現在世界各地で低エネルギー太陽ニュートリノの分離検出を目指し、様々な計画が立てられている。 $^7\text{Be}$ の観測を目指すBOREXINOはすでに建設中であり、 $^7\text{Be}$ だけでなくppも観測対象とする実験ではXMASS、HERON、CLEANな

どがある。現在稼動している実験では、スーパーカミオカンデにおいてさらなるエネルギー閾値の引き下げが計画されており、またカナダのSNOでは、検出器のターゲットを重水から液体シンチレーターに入れ替える計画も立てられている。そして原子炉からの反ニュートリノ、地球からの反ニュートリノの検出などで低エネルギーの領域での観測を行っている KamLAND もまた、次期目標を太陽からのニュートリノに向けている。

低エネルギー領域での観測を行う際の最大の障害は、検出器外部からのバックグラウンドはもちろんだが、とりわけ深刻なのは検出器内部に存在する放射性不純物によるバックグラウンドである。放射性不純物の除去はニュートリノ実験を行う際のもっとも重要な R&D の 1 つであり、世界の様々な実験で研究が行われている。最近の実験計画で KamLAND と同じく低エネルギー太陽ニュートリノ観測を目指している BOREXINO においても精力的な研究が行われており、BOREXINO では蒸留法と液液抽出法による純化を予定している [3]。

本研究の目的は、次期太陽ニュートリノ観測に向けた、KamLAND 内部からのバックグラウンドの除去である。現在 KamLAND は、世界中のニュートリノ実験と比較しても極めて低いバックグラウンドを達成している。しかし内部には U、Th 系列の放射性不純物や  $^{40}\text{K}$ 、また  $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{39}\text{Ar}$  といった希ガスが存在し、それらのスペクトルが太陽ニュートリノの観測領域を完全に覆ってしまっている状況にある。これらを液体シンチレーターから除去できれば、さらにエネルギー閾値を下げるのが可能となり太陽ニュートリノ観測が実現する。現在のところ  $^7\text{Be}$  ニュートリノの観測領域までの KamLAND での削減目標値は、非常に大きなバックグラウンドを生成する半減期 22.3 年という長寿命の  $^{210}\text{Pb}$  の下流に位置する  $^{210}\text{Bi}$  に関しては 5 桁、同じく 1MeV 以下の領域に大きなバックグラウンドを形成する半減期 10.756y の  $^{85}\text{Kr}$  については 5~6 桁、 $^{40}\text{K}$  に関しては 2 桁以上の削減を目標としている。

現段階では蒸留を用いた実験により、希ガスである  $^{85}\text{Kr}$  に関してはノルマルパラフィンから  $\leq 1.3 \times 10^{-5}$  の削減結果が示されている [4]。また  $^{222}\text{Rn}$  に関しては半減期が 3.8 日であることから、現在の KamLAND の液体シンチレーターでは問題ない量となっているが、鉱山内という高濃度 Rn 環境下 ( $3000\text{Bq}/\text{m}^3$ ) での純化の過程で再混入して  $^{210}\text{Pb}$  となる恐れがあるため、その除去方法の確立も重要である。 $^{222}\text{Rn}$  についても蒸留法により  $\sim 10^{-3}$  の削減結果が示されている [4]。 $^{40}\text{K}$  に関しては KamLAND の液体シンチレーターの成分の PPO ( $5.3 \times 10^{-11}$ ) にと NP ( $\leq 1.2 \times 10^{-12}$ ) に含まれていることが確認されている。その除去に関しては PPO の 1 回の蒸留操作から  $3.8 \times 10^{-2}$  の削減が ICP 質量分析装置による測定から確認されている。しかしこの  $^{40}\text{K}$  除去率に対しては、1 回の操作によるものであることからさらに削減可能とされている。 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{39}\text{Ar}$ 、また新たに混入の恐れがある  $^{222}\text{Rn}$  に関しては、希ガスであることから窒素パージによる除去が可能であることも実験により示されている。これにより  $^{85}\text{Kr}$  に関しては 2 重の除去が可能となりさらなる削減が期待できる。

放射性物質以外の大きなバックグラウンドとして、 $^{11}\text{C}$  の原子破砕反応のバックグラウンドが、0.7MeV 以上の CNO と  $^7\text{Be}$  ニュートリノの領域に形成されている。これらのバックグラウンドの除去については、原子破砕反応後のニュートロンを捉え同定することにより除去することが期待されており、これから予定されているエレクトロニクス改良により可能になる予定である [12]。

本実験では残る最大のバックグラウンドであるウラン系列からの  $^{210}\text{Pb}$  を除去することを目的としている。 $^{210}\text{Pb}$  の除去により、その娘核である  $^{210}\text{Bi}$  の  $\beta$  崩壊からのバックグラウンド、 $^{210}\text{Po}$  の  $\alpha$  崩壊からのバックグラウンドを除去することが可能となる。現在まで  $^{210}\text{Pb}$  の除去はコロポレーターにより様々な研究が行われており、液液抽出法、シリカゲルによる吸着法、EDTA によ

る吸着法などの除去法が挙げられるが、その除去率は10~100分の1に留まり、太陽ニュートリノ観測での5桁の除去目標を達成するには現実的でなかった。また液体シンチレーターの発光特性においても、PPOが吸着物質により取り除かれてしまうなど問題があった。本研究では蒸留という化学的手法を用いて、液体シンチレーターから $^{210}\text{Pb}$ の除去する実験を行った。また蒸留操作が液体シンチレーターに及ぼす影響についても発光特性の評価にて行った。

以下の2章では本実験の動機である太陽ニュートリノおよび星の進化の理論と標準太陽模型について述べる。そして太陽ニュートリノ問題と、過去から現在までの太陽ニュートリノ実験についてまとめ、予定されているKamLANDでの太陽ニュートリノ観測の意義についても述べる。3章ではまず検出器である、KamLAND本体、エレクトロニクス、純化装置設備について、そしてKamLANDでの太陽ニュートリノの観測方法、期待されるスペクトルを中心に、KamLANDにおけるディテクターアクティビティと観測の実現に必要な純化の目標値について述べる。4章では液体シンチレーターの純化に関する実験について、その手法と結果を述べる。また実機を想定した大規模のテストベンチについてもまとめたい。5章では純化後の液体シンチレーターの性能評価を発光量について行う。6章では4、5章の蒸留実験のまとめと今後の展望と課題について考察する。

## 第2章 太陽ニュートリノ問題

### 2.1 星の進化の理論とニュートリノ

我々の最も身近な天体である太陽は主系列星に属する恒星である。1920年エディントンにより、恒星のように自ら輝く星のエネルギーの源は核反応によるものであることが示唆された。その後の研究により、重力収縮による温度上昇により中心温度が  $10^7$  [K] を超えた段階で、星の主成分である水素を原料として熱核融合反応を始めることがわかった。この星の内部の熱核融合反応はガモフやベータらにより定式化され、それに基づきチャンドラセカールらにより恒星進化論が築かれた。主系列星に属する恒星は、水素燃焼の続く限り重力収縮は起こらず安定な状態が続く。太陽はまさに今この状態にあり中心部分で絶えず水素燃焼による熱核融合反応が起こっている。この核融合反応は pp 連鎖と CNO サイクルの 2 系統を持ち、まとめて表すと



と書け、1回の核融合過程により、ヘリウムと2個の陽電子と2個の電子ニュートリノ、そして約 27MeV のエネルギーを放出する。このエネルギーはヘリウムの原子核が陽子4個を合わせた全質量に比べてわずかに小さいことより生じる。この反応1回あたりのエネルギーは小さいが、太陽の内部では莫大な回数の反応が起こっており、毎秒あたりの質量損失は500万トン、エネルギーは約  $3.85 \times 10^{33}$  [erg/sec] にも達し、これにより太陽は輝いている。pp 反応は莫大な回数で起こっている反応であるが、その反応は陽子同士がクーロン力で反発しあうため非常にゆっくりと進行する。前述したように主系列星の中心温度は  $10^7$  [K] でエネルギーに換算すると 1keV となるが、核子の大きさがおよそ 1[fm] であることからクーロンエネルギーは約 1MeV となり、陽子はクーロン障壁 (図 2.1) を越えることはできない。反応が進行するのは量子力学的なトンネル効果により、ある確率でクーロン障壁を通り抜けるためである。このトンネル効果によりゆっくりと反応が進行するため、主系列星は長期間安定して輝くことができる。この反応により生成されるニュートリノについては後で太陽ニュートリノとしてその生成機構についても合わせて書く。

### 2.2 標準太陽模型- Solar Standard Model

標準太陽模型とは主系列星のような標準的な構成の構造と進化の理論に基づいて構築された理論的模型であり、以下の近似の法則を仮定して構築されている。

- 1 静水圧平衡
- 2 光子や対流運動によるエネルギー輸送
- 3 核反応によるエネルギー生成



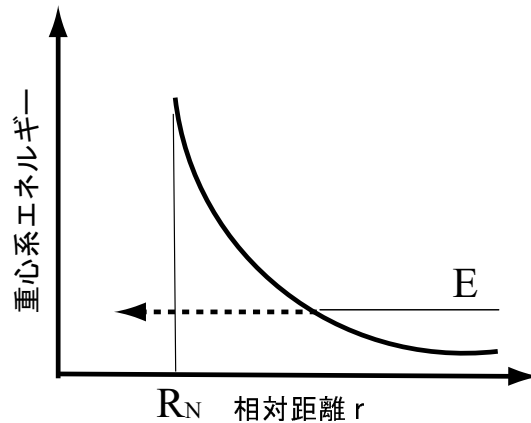


図 2.1: クーロン障壁：重心系エネルギー  $E$ 、 $R_N$  は 2 つの陽子の間に核力が働いて反応が起きる距離 [fm]

#### 4 核反応だけにより引き起こされる存在量の変化

これらに核反応の断面積や密度、温度といった関係を記述する状態方程式を与えると、太陽の構造を記述する一連の微分方程式が得られる。これに初期の均一な水素存在量をパラメーターとして入れ、ルミノシティや半径を一致させるように太陽の年齢を増やし、現在の太陽と良い一致をするものを計算する。こうして得られたものが標準太陽模型 (SSM) とよばれるもので、この模型を使って太陽の音速の分布を計算してみると日震学の観測とのずれは 0.1% に収まり非常に良い一致を示している。このように実際の観測値と良い一致を持つ SSM の信頼性は高く、中心温度、密度といった観測では得られない値を計算することができる。しかし唯一 SSM と一致しない結果を持つのがニュートリノである。そのため太陽ニュートリノに関する SSM の予測値と観測値の検証は、SSM の信頼性を確かめる重要な検証となる。

### 2.3 太陽ニュートリノ

太陽の核融合反応は式 2.1 により書ける。この時生成されたニュートリノは、非常に透過力が強い性質から太陽の内部には留まらず、エネルギーを伴って太陽の外へと放射される。そのエネルギーの 98.5% は pp 連鎖と呼ばれる核融合反応過程により起こる。残りの 1.5% は炭素、窒素、酸素の原子核が触媒的に作用する CNO サイクルと呼ばれる核融合反応過程となる。その各反応を表したのが図 2.2 である。

pp 連鎖の始まりは、2 個の陽子が融合して重陽子となり陽電子とニュートリノを放出する pp 反応である。この反応は終状態 3 体のためニュートリノは連続エネルギーを持つ。太陽からのエネルギーのほとんどがこの pp 反応を始点にもつため、太陽ニュートリノにおいては pp ニュートリノが最大のフラックスをもつ。そして太陽からの全ニュートリノフラックスは、太陽のルミノシティなどから正確に求められる。そのため全フラックスの 9 割を占める pp ニュートリノの理論値は、標準太陽模型や、反応断面積といった計算過程での不定性に左右されにくい。同じく pp 連鎖の始めの反応として pp 反応以外には、非常に少ない確率 (0.23%) で 2 個の陽子と電子による 3

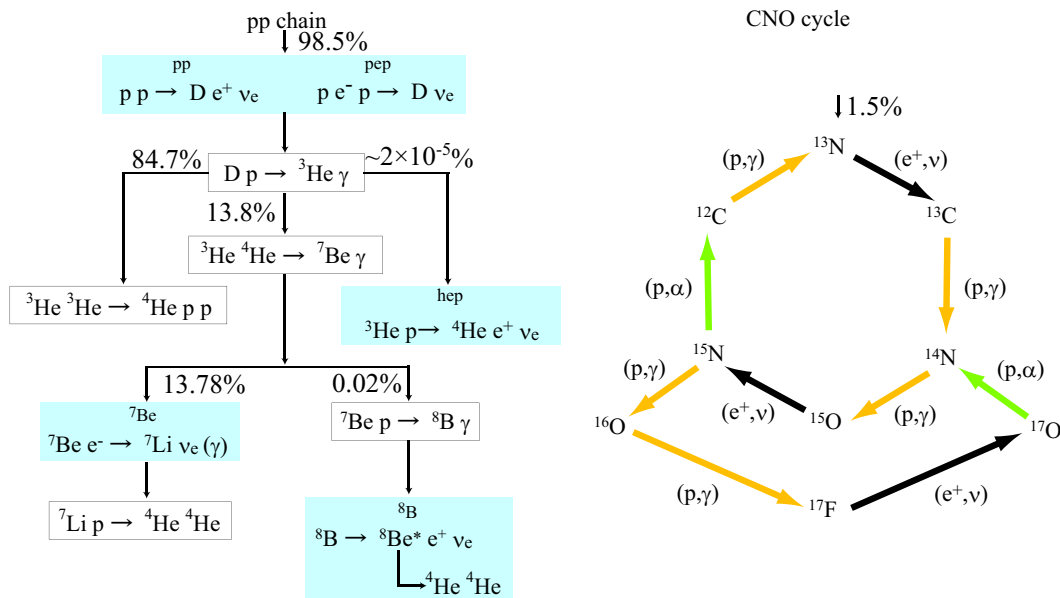


図 2.2: 左図は太陽内部での pp 連鎖過程による核融合反応：右図は CNO サイクルによる核融合反応を表す

体反応があり、これもまた重陽子とニュートリノを放出する。この反応は pep 反応と呼ばれニュートリノは pep ニュートリノと呼ばれる。pp または pep 反応後、3つのブランチを持つ。そのうちの 84.7%は重陽子と陽子の反応をしてニュートリノを出さない反応となる。残りの 13.8%のうちの 13.78%は電子捕獲反応により  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノを放出する反応であり、0.02%は陽子捕獲反応により  ${}^8\text{B}$  ニュートリノを放出する反応となる。 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノを放出する  ${}^7\text{Be}$  の電子捕獲反応では 90%の割合で  ${}^7\text{Li}$  の基底状態に、残りの 10%は  ${}^7\text{Li}$  の励起状態に行く。この時、どちらの反応も終状態が 2 体であるため、ニュートリノのエネルギーは一定となり単色のスペクトルを持つ。 ${}^8\text{B}$  ニュートリノを放出する反応では、終状態である  ${}^8\text{Be}^*$  が不安定であるため最大エネルギーは幅を持つ。その他には、 $2 \times 10^{-5}$  という非常に小さいブランチで hep 反応と呼ばれる反応があり、hep ニュートリノを放出する。hep ニュートリノは太陽ニュートリノでは最大のエネルギーを持つが、ブランチが非常に小さいため、フラックスもまた非常に低い。このように様々な反応が起こっている pp 連鎖であるが、最終的にどのブランチを通っても、式 2.1 の反応が起きている。各ブランチから生成されるニュートリノのエネルギー（最大と平均）と標準太陽模型から計算されたフラックスの値は表 2.1 [5] のようになっている。

もう 1 つの太陽の反応過程である CNO サイクルについて説明する。この過程は炭素、窒素、酸素が触媒として働き図 2.2 の右図のような反応を起こす。最終的にはこの反応過程も pp 連鎖と同様に、式 2.1 の反応が起きている。各ブランチから生成されるニュートリノのエネルギー（最大と平均）と標準太陽模型から計算したフラックスの値は表 2.2 のようになっている [5]。CNO サイクルと pp 連鎖の割合は、中心の温度に強く相関をもつ。それを表したのが図 2.3 である。温度が高いほど CNO サイクルの割合が大きくなるが、現在の太陽の中心温度では全体のエネルギーのうち CNO サイクルは 1.5%の寄与となっており、pp 連鎖による熱核融合反応が支配的である。

ニュートリノ	最大エネルギー [MeV]	平均エネルギー [MeV]	フラックス [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ](BP04)
pp	0.420	0.265	$5.94(1 \pm 0.01) \times 10^{10}$
pep	1.442	1.442	$1.40(1 \pm 0.02) \times 10^8$
${}^7\text{Be}$	0.862(90%)	0.862	$4.86(1 \pm 0.12) \times 10^9$
	0.384(10%)	0.384	
${}^8\text{B}$	14.02	6.710	$5.82(1 \pm 0.23) \times 10^6$
hep	18.77	9.62	$7.88(1 \pm 0.16) \times 10^3$

表 2.1: pp 連鎖により生成されるニュートリノ

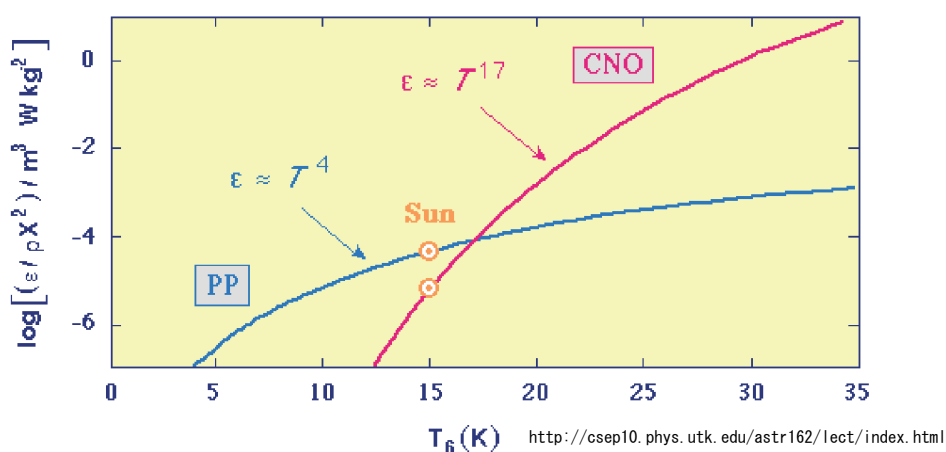


図 2.3: pp 連鎖と CNO サイクルのエネルギー生成比と温度の相関 [8]

ニュートリノ	最大エネルギー [MeV]	平均エネルギー [MeV]	フラックス [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ] (BP04)
${}^{13}\text{N}$	1.199	0.707	$5.71(1^{+0.37}_{-0.35}) \times 10^8$
${}^{15}\text{O}$	1.732	0.997	$5.03(1^{+0.43}_{-0.39}) \times 10^8$
${}^{17}\text{F}$	1.740	0.999	$5.91(1^{+0.44}_{-0.44}) \times 10^6$

表 2.2: CNO サイクルにより生成されるニュートリノ

### 2.3.1 ニュートリノ

1930 年代にボーア (N.Bohr) とパウリ (W.Pauli) らによって、 $\beta$  崩壊において電子が連続的なエネルギー分布を持つことでエネルギーが保存せず、また角運動量も保存していないことより、未知の中性で非常に軽いスピン  $1/2$  の粒子が予言されていた。

$$n \rightarrow p + e^{-} + \nu \quad (2.2)$$

1950 年代ライネス (F.Reines) コーワン (C.Cowan) らは、原子炉からの反ニュートリノを遅延同時計測を用いての観測に成功し、ニュートリノの存在を確かめた。ニュートリノの性質はワイン

バーク-サラムの標準理論によれば、質量は0で弱い相互作用のみをする素粒子とされている。弱い相互作用をする粒子は  $e, \mu, \tau$  と同じレプトン族に分けられ、これらと対応する

$$\begin{pmatrix} e & \mu & \tau \\ \nu_e & \nu_\mu & \nu_\tau \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

の3種類存在すると予言されている。しかし現在ではニュートリノが質量を持つことが示唆されており、次節のニュートリノ振動もまたニュートリノに質量があることを示すものである。

### 2.3.2 ニュートリノ振動

#### 真空でのニュートリノ振動

太陽ニュートリノの標準太陽模型の理論値と観測結果のずれを説明する物理として、ニュートリノの伝播の理論がある。弱い相互作用の固有状態を  $\nu_\alpha (\alpha = e, \mu, \tau)$ 、質量の固有状態を  $\nu_j (j=1,2,3)$  と置く。これらは、クォークでの小林・益川行列と同じように、混合行列として書き表される。

$$|\nu_\alpha\rangle = U_{\alpha j} |\nu_j\rangle (\alpha = e, \mu, \tau, j = 1, 2, 3) \quad (2.4)$$

質量固有状態の時間発展はシュレーディンガー方程式より、

$$i \frac{d}{dt} |\nu_j\rangle = E_j |\nu_j\rangle \quad (2.5)$$

と書け、ここで  $E_j$  は  $\nu_j$  のエネルギーとすると、波動関数は以下のように書ける。

$$|\nu_j(t)\rangle = e^{-E_j t} |\nu_j(0)\rangle \quad (2.6)$$

式 2.4、2.5、2.6 を用いて、弱い相互作用の固有状態は

$$i \frac{d}{dt} |\nu_\alpha\rangle = U_{\alpha j} E_j U_{j\alpha}^\dagger |\nu_\alpha\rangle \quad (2.7)$$

$$|\nu_\alpha(t)\rangle = U_{\alpha j} e^{-iE_j t} U_{j\alpha}^\dagger |\nu_\alpha(0)\rangle \quad (2.8)$$

と書き表される。 $\nu_\alpha$  が  $t=0$  の時に生成されたとすると、時刻  $t$  において  $\nu_\alpha$  が観測される確率は

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\alpha) = |\langle \nu_\alpha(t) | \nu_\alpha(0) \rangle|^2 \quad (2.9)$$

$$= |\langle \nu_\alpha(t) | U_{\alpha j} e^{-iE_j t} U_{j\alpha}^\dagger | \nu_\alpha(0) \rangle|^2 \quad (2.10)$$

簡略化して2つのフレーバーで考えると、混合行列  $U$  は

$$U = \begin{pmatrix} \cos \theta_V & \sin \theta_V \\ -\sin \theta_V & \cos \theta_V \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

と書ける。ここで  $\theta_V$  は真空中での混合角である。

これらより  $\nu_e$  の振動確率と生存確率を求める。 $\Delta m^2 = |m_2^2 - m_1^2|$ 、 $L$  はニュートリノ発生点から観測点までのニュートリノが伝播した距離とする。ニュートリノの質量が非常に微小で  $p \gg m_j$  であるとする、エネルギーは

$$E_j = \sqrt{p^2 + m_j^2} \simeq p + \frac{m_j^2}{2p} \quad (2.12)$$

となる。これより振動確率は

$$P_{\nu_e \rightarrow \nu_x} = \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 t}{4p}\right) \quad (2.13)$$

$$= \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{1.27\Delta m^2[\text{eV}^2]L[\text{m}]}{E[\text{MeV}]}\right) \quad (2.14)$$

と書き表され、生存確率は

$$1 - P_{\nu_e \rightarrow \nu_x} = P_{\nu_e \rightarrow \nu_e} = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 t}{4p}\right) \quad (2.15)$$

$$= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{1.27\Delta m^2[\text{eV}^2]L[\text{m}]}{E[\text{MeV}]}\right) \quad (2.16)$$

表せる。これらの式により、ニュートリノ発生点で発生したある種類のニュートリノが、距離  $L$  離れた観測点でどのくらいの確率で振動して違うニュートリノに変化してしまっているのか（振動確率を確率 1 から引いたのが変化しないで残った生存確率となる）を知ることができる。通常、実験では観測点  $L$ 、エネルギー  $E$  の値がわかっており観測値と理論値から振動確率が求まるため、 $\Delta m^2$  と混合角  $\theta$  のパラメーターを振動解と呼んでいる。

#### 物質中でのニュートリノ振動

電子ニュートリノは物質中を伝播する時、電子と散乱して電子密度に比例するポテンシャルを受け真空中より重い見せ掛けの質量を得る。ポテンシャルは次のように書かれる

$$V_e = \sqrt{2}G_F N_e \quad (2.17)$$

$G_F$ : フェルミ結合定数  $N_e$ : 電子数密度

この過大な質量が、物質中での弱い相互作用の固有状態と質量固有状態を変え、真空中での混合角  $\theta_V$  が小さい場合でも、物質中では大きくなりえる。この理論は J. Wolfenstein により提案され、S.P. Mikheyev と A.Y. Smirnov によって太陽内のニュートリノ振動にも拡張され、MSW 効果と呼ばれている。

この MSW 効果を表したものが図 2.4 である。真空の振動と物質の振動の変移が起こるのはおよそ 2MeV 付近であり、 $^8\text{B}$  ニュートリノ実験により確認することができる。図 2.5 は質量の固有状態に対応した質量の変化を電子密度の関数として書いたものである。 $\nu_e$  は電子密度が大きくなると質量が大きくなるが、 $\nu_\mu$  は変わらない。 $N_{ec}$  は太陽の中心の電子数密度、 $N_{er}$  は共鳴の起きる密度を示す。 $N_e = 0$  は真空（太陽外）に対応する。物質中での固有解は  $\tilde{\nu}_1$ 、 $\tilde{\nu}_2$  は  $\nu_e$  と  $\nu_\mu$  の混合であり  $N_e \gg N_{er}$  の時は  $\tilde{\nu}_2 \sim \nu_e$ 、 $N_e \ll N_{er}$  の時は  $\tilde{\nu}_2 \sim \nu_\mu$  であり図 2.5 の実線に対応する。この 2 つの曲線は交わることはなく、最も近くなる密度が  $N_{er}$  の点で共鳴が起こる。物質の混合角  $\theta_m$  は真空中の混合角を  $\theta_V$  として次のような関係が成り立つ。

$$\tan 2\theta_m = \frac{\sin 2\theta_V \frac{\Delta m^2}{2E}}{\cos 2\theta_V \frac{\Delta m^2}{2E} - V_e} \quad (2.18)$$

共鳴条件を満たすときは以下の条件の時である。

$$\cos 2\theta_V \frac{\Delta m^2}{2E} - V_e = 0 \rightarrow \theta_m = \frac{\pi}{4} \quad (2.19)$$

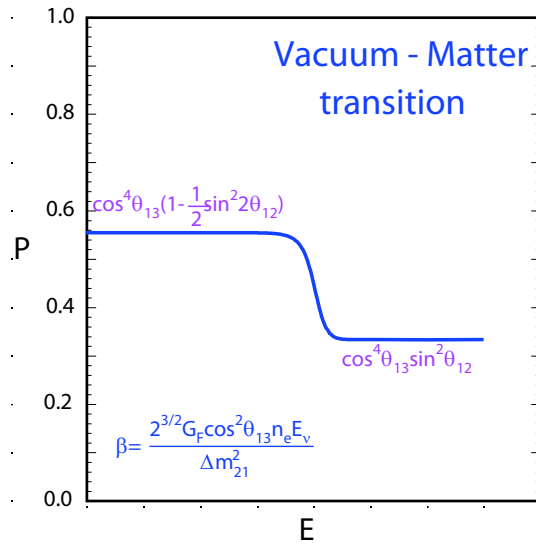


図 2.4: 電子ニュートリノの生存確率：LMA 振動解をもちいたニュートリノエネルギー

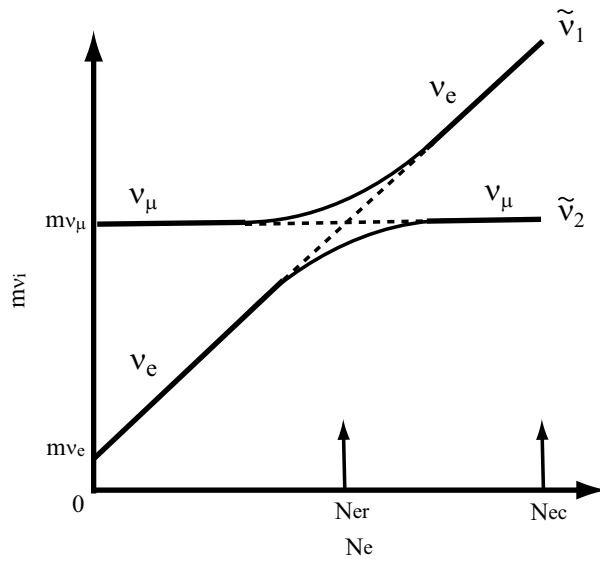


図 2.5: 太陽内で質量が電子の数密度の関数として変わる様子

式 2.19 より、真空中での混合角が小さくても共鳴条件を満たすならば混合は大きくなり、ニュートリノ振動が起こりうることを示している。

## 2.4 太陽ニュートリノ問題

### 2.4.1 太陽ニュートリノの反応プロセス

現在までの実験では、太陽から放射されているニュートリノの検出には次の2つの反応のいずれかを用いている。

#### 電子とニュートリノの弾性散乱

この反応に式 2.20 と書き表され、その媒介するものにより2種類ある。 $W^+$  または  $W^-$  によって媒介される反応を荷電カレント反応といい、 $Z^0$  により媒介される反応を中性カレント反応という。(図 2.6) 電子ニュートリノの弾性散乱の反応では、荷電カレント、中性カレントの両方の反応を持つが、 $\mu$ 、 $\tau$  ニュートリノは  $e$  と二重項を構成しないことから、 $W^{+-}$  をやり取りして散乱することはできない。 $Z^0$  を交換する場合は、フレーバーの保存から  $\mu$ 、 $\tau$  ニュートリノとして存在する。このため  $\mu$ 、 $\tau$  ニュートリノでの弾性散乱は  $W^{+-}$  の交換を含まない純粋な中性カレント反応である。

$$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^- \quad (2.20)$$

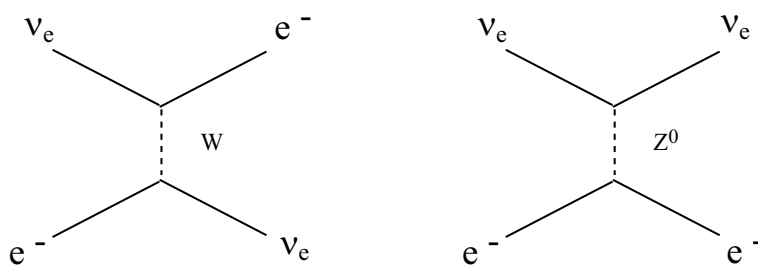


図 2.6:  $\nu_e - e$  散乱

#### 原子核によるニュートリノ捕獲反応

原子核によるニュートリノ捕獲反応と呼ばれ、ニュートリノが原子核 ( $A, Z$ ) と反応して電子に変わり原子核は陽子が1増える反応である(図 2.7)。塩素実験やガリウム実験もこの反応を式 2.22、式 2.23 のように利用した実験である。塩素、Ga 実験の反応は終状態は寿命が長く、軌道電子捕獲により崩壊を起こし元の原子に戻る。この崩壊数を比例計数管を用いて測定し、ニュートリノ数を見積もる。この反応は  $W$  によって媒介され、荷電カレント反応である。

$$\nu_e + (A, Z) \rightarrow e^- + (A, Z + 1) \quad (2.21)$$

$$\nu_e + {}^{37}\text{Cl} \rightarrow e^- + {}^{37}\text{Ar}(T_{1/2} = 34.8[\text{day}])(\text{塩素実験}) \quad (2.22)$$

$$\nu_e + {}^{71}\text{Ga} \rightarrow e^- + {}^{71}\text{Ge}(T_{1/2} = 11.4[\text{day}])(\text{ガリウム実験}) \quad (2.23)$$

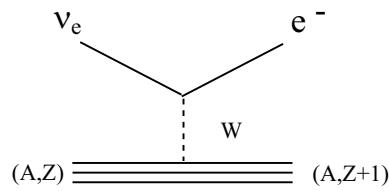


図 2.7: 原子核によるニュートリノ捕獲反応

#### 2.4.2 太陽ニュートリノ問題

1968年に始められたデービスらによる塩素実験から現在まで数多くのニュートリノ実験が行われてきた。今までの代表的な太陽ニュートリノ実験とその結果を表 2.3 示す。また図 2.8 は、各実

実験	反応	観測値	観測値/理論値 <sub>SSM-BP2004</sub>
Homestake	$^{37}\text{Cl} \rightarrow ^{37}\text{Ar}(814\text{keV})$	$2.56 \pm 0.16 \pm 0.16$	$0.30 \pm 0.07$
GALLEX/GNO	$^{71}\text{Ga} \rightarrow ^{71}\text{Ge}(233\text{keV})$	$69.3 \pm 4.1 \pm 3.6$	$0.53 \pm 0.06$
SAGE	$^{71}\text{Ga} \rightarrow ^{71}\text{Ge}(233\text{keV})$	$66.9 \pm 3.9 \pm 3.6$	$0.51 \pm 0.06$
Kamiokande	$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$	$2.80 \pm 0.19 \pm 0.33$	$0.48 \pm 0.13$
Super-Kamiokande	$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$	$2.35 \pm 0.03^{+0.07}_{-0.06}$	$0.40 \pm 0.09$
SNO	$\nu_e + D \rightarrow p + p + e^-$ (CC)	$1.59^{+0.08+0.06}_{-0.07-0.08}$	$0.27 \pm 0.07$
	$\nu_x + D \rightarrow p + n + \nu_x$ (NC)	$5.21 \pm 0.27 \pm 0.38$	$0.90 \pm 0.22$
	$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-$ (ES)	$2.21^{+0.31}_{-0.26} \pm 0.10$	$0.38 \pm 0.15$

表 2.3: 太陽ニュートリノ実験の反応とそのエネルギー閾値、観測値（誤差は統計誤差、系統誤差の順に表記）と SSM による理論値と観測値との比

験のエネルギー閾値から観測可能な太陽ニュートリノを示したものである。太陽ニュートリノ問題はデーヴィスらの塩素実験の観測値が標準太陽模型 (SSM) からの理論予想値の約 30% しかなかったことから始まった。この実験でのエネルギー閾値は 0.84MeV であり、 $^7\text{Be}$ 、 $^8\text{B}$  ニュートリノに対して感度がある。観測されたニュートリノの約 80% が  $^8\text{B}$  ニュートリノであったため  $^8\text{B}$  ニュートリノの欠損が考えられ、塩素実験に続いて  $^8\text{B}$  ニュートリノを観測した Kamiokande もまたその結果を追認した。太陽ニュートリノの欠損が決定的となったのは、 $^{71}\text{Ga}$  を用いたエネルギー閾値 0.233MeV のガリウム実験によってである。ガリウム実験は SAGE や GALLEX、GNO などにより行われ、その結果もまた太陽ニュートリノの欠損を示すものであり、特に低エネルギーの pp、 $^7\text{Be}$  ニュートリノにおける欠損を指摘した。現在のところ、2002 年の SNO の結果のみが観測値と理論値の良い一致をだしている。SNO の実験は表 2.3 で示したように荷電カレント (CC)、中性カレント (NC)、電子散乱 EC 反応すべてを測定可能であり、NC の反応は全てのニュートリノに感度がある。つまり NC 反応は  $\nu_e \rightarrow \nu_\mu, \nu_\tau$  の振動により変化した  $\nu$  も観測できるため SSM との直接比較することが可能となる。この結果では、SNO が感度を持つ  $^8\text{B}$  ニュートリノに関しては SSM と良く一致しており、太陽ニュートリノが伝播中に他のニュートリノに変化したことを示している。各実験の測定値と理論値をグラフにしたのが図 2.9 である。



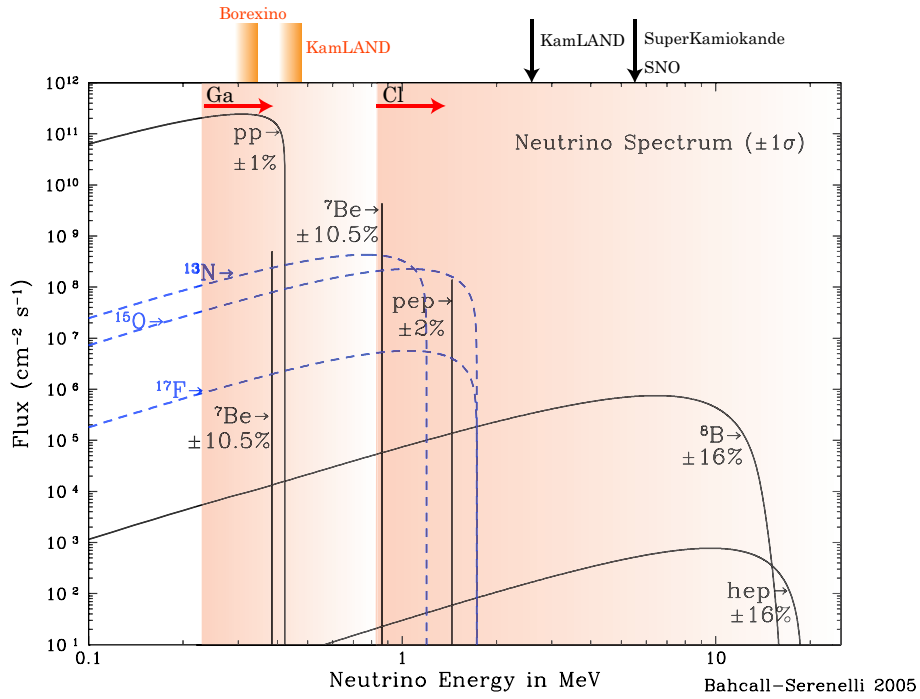


図 2.8: 太陽ニュートリノスペクトラムと各実験のエネルギー閾値 [7]

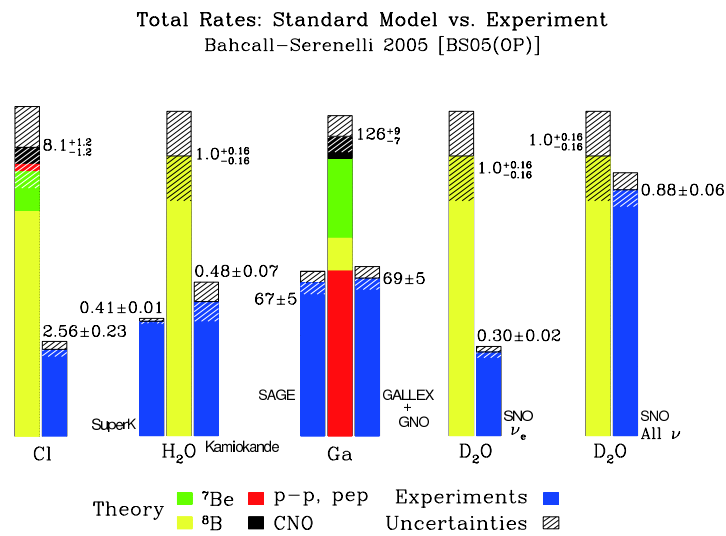


図 2.9: SSMからの太陽ニュートリノ理論値と実験値との比較: この理論値より太陽ニュートリノが不足することを太陽ニュートリノ問題と呼ぶ [7]

## ニュートリノ振動解

太陽ニュートリノの欠損は様々な場所、実験手法により行われた実験により、独立に示されてきた。これらの太陽ニュートリノの欠損を説明する最も有力な解は、有限質量をもつニュートリノが振動を引き起こしているというもので、特に物質中におけるニュートリノ振動を説明する MSW 効果は、これらのニュートリノの欠損を非常に良く説明する。2002 年の SNO の NC 反応の結果も振動による太陽ニュートリノのフレーバーの混合という現象を強く支持する。太陽ニュートリノ実験が観測した強度から、許容される物質振動解内のニュートリノ振動解パラメーター領域を図示したのが図 2.10 である。2002 年の KamLAND の結果により LMA 解のみを残して SMA、LOW 解は排除されていたが [10]、2004 年の KamLAND の結果によりさらにその領域は狭まり、 $\Delta m^2$  の領域に対してその不定性を 8% に抑えるまでに至っただけでなく、ニュートリノ振動を直接観測したことで、ニュートリノ振動の存在を実験的に確認した。[11]。このことは太陽ニュートリノ問題の有力解であったニュートリノ振動を実験的に裏付けることとなり、太陽ニュートリノ問題に決着をつけた。

## 2.5 KamLAND 太陽ニュートリノ観測の意義

太陽ニュートリノ問題がニュートリノ振動により説明できることがわかってきた。しかし太陽ニュートリノ実験は、混合角には強い制限を与えることができるが、 $1.5 \times 10^{11}$  [m] 離れた太陽からのニュートリノを地球で観測するため  $\Delta m^2$  による振動の変化が見えにくい。そのため  $\Delta m^2$  に強い制限与えられる  $\Delta m^2 \sim \frac{E}{L}$  となるような実験が求められた。その実験に合致したのが KamLAND 実験である。KamLAND は観測対象を太陽ではなく地上の原子炉に向け、2004 年には KamLAND から  $\sim 180$  km 離れた原子炉からの低エネルギーの反電子ニュートリノ (1.8  $\sim$  10 MeV) を捕らえることにより、振動解に対して、特に太陽ニュートリノ実験では感度の悪い  $\Delta m^2$  に対して非常に強い制限をつけた (図 2.11)。このようにして太陽ではなく原子炉からのニュートリノにより振動解の許容領域を飛躍的に狭めた KamLAND であるが、もうひとつの特徴として他の太陽ニュートリノ実験にはないほどの低いエネルギー閾値をもつ。次期 KamLAND では現在よりもさらに閾値を下げ新たな低エネルギー太陽ニュートリノのリアルタイム検出を目指している。

### 2.5.1 KamLAND での低エネルギー太陽ニュートリノ観測

#### リアルタイム検出の意義

太陽ニュートリノにおいて最大のフラックスを持つのが pp ニュートリノであり、次に大きな寄与を持つのは  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノで約 13% (全体を 100% とした時は約 7%) となっている。低エネルギーのニュートリノほど太陽からの寄与が大きく、圧倒的な統計量を持ちまた理論的不定性が少ない。放射化学法を用いた、塩素実験、ガリウム実験においてはこれらのニュートリノを観測しているが、積分強度を観測しているため各々のニュートリノの量を分離検証することはできない。一方リアルタイムによる観測はエネルギーと時間情報、さらに現在稼働中の SuperKamioKande によるチェレンコフ光をもちいた実験では方向の情報も得られ、SSM を各ニュートリノごとに検証することができる。しかし現在のところ、リアルタイム検出器はバックグラウンドによるエネルギー閾値の制限により  ${}^8\text{B}$  ニュートリノのみの観測となっている。放射化学法以来、現在のところ

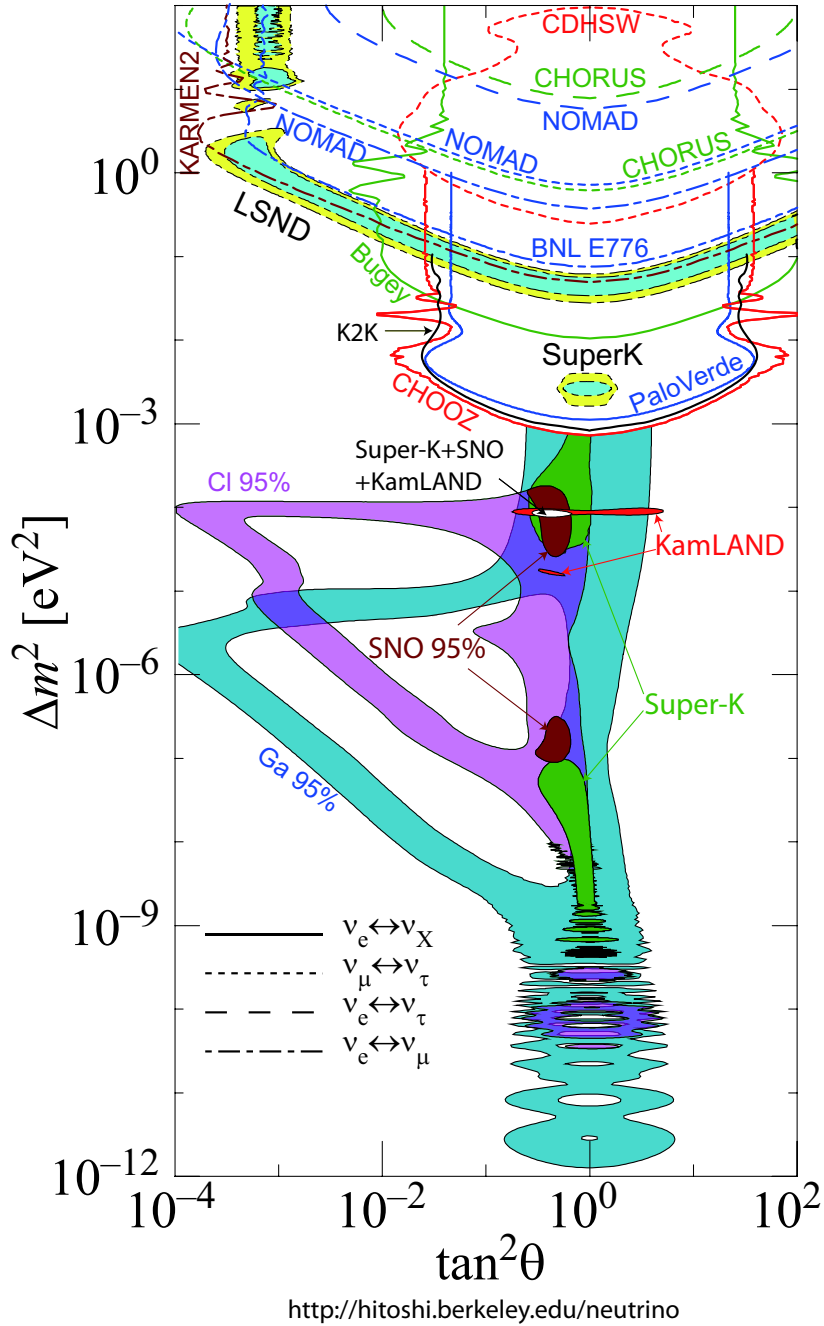


図 2.10: 太陽ニュートリノ実験におけるニュートリノ振動解 [9]

1MeV 以下の太陽ニュートリノを観測した実験はなく、特に SSM の精密検証においては低エネルギー太陽ニュートリノの分離検出が望まれている。KamLAND は低エネルギー領域のバックグラウンド削減を行い、現在はエネルギー閾値 (図 2.12) 以下にあるため見ることができない、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの分離検出を目指し、またさらに寄与の小さい CNO、pep ニュートリノや、高エネルギーの  ${}^8\text{B}$  ニュートリノの観測も視野に入れている。

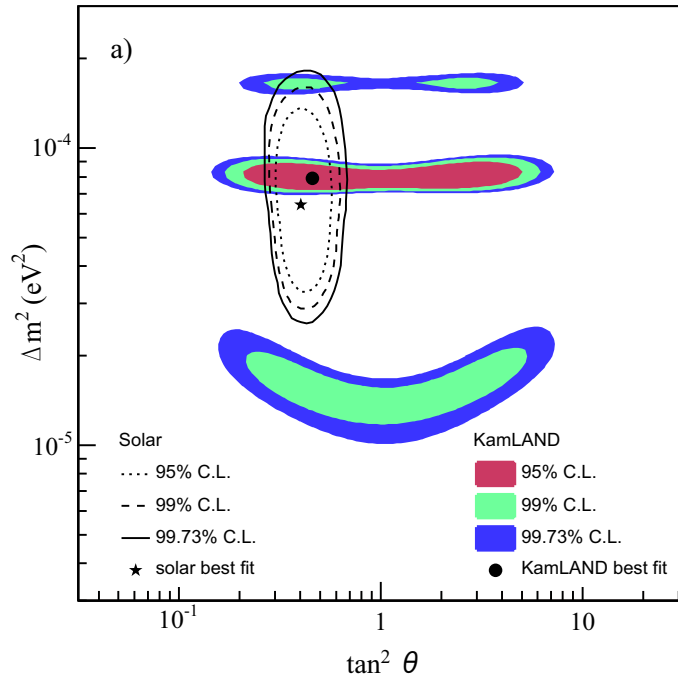


図 2.11: KamLAND 実験の Rate+Shape により許容される領域と太陽ニュートリノの global analysis による許容される領域 [11]

### ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ観測から期待されること

#### ニュートリノフラックスの実験誤差の改善

放射化学法による観測のみである低エネルギーのニュートリノフラックスは観測値の誤差は大きく、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノにおいては  $40\%(1\sigma)$  と SSM により計算されたフラックスの誤差  $\pm 10.5\%$  (BS05) よりも大きい。KamLAND ではリアルタイム観測による  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの分離検出が可能のため、実験により  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノを  $\pm 10\%$  の精度で観測できたとしたら、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノに関してはファクターにして 4 の改善が見込める。また  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノ観測は、ルミノシティの制限により pp ニュートリノフラックスの誤差に対しても改善可能となる。現在のところ唯一、pp ニュートリノを観測しているガリウム実験のデータに対しても、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの観測により、pp ニュートリノのフラックスの不定性に対してファクターにして 2.5 の改善が見込まれる [5]。

#### SSM の検証

${}^3\text{He} + {}^4\text{He} \rightarrow {}^7\text{Be} + \gamma$  の反応から陽子捕獲により 0.02% で分岐した  ${}^8\text{B}$  ニュートリノの量は 2002 年の SNO 実験の NC 反応の結果から、その量は SSM からの予測値と一致する。同じ反応から電子捕獲により 13.78% で分岐した  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの精密検出は、SSM からの予測値との検証を行うだけでなく、実験的に誤差の大きい  ${}^3\text{He} + {}^4\text{He} \rightarrow {}^7\text{Be} + \gamma$  の反応の断面積についても検証にも繋がる。

#### 振動解の検証

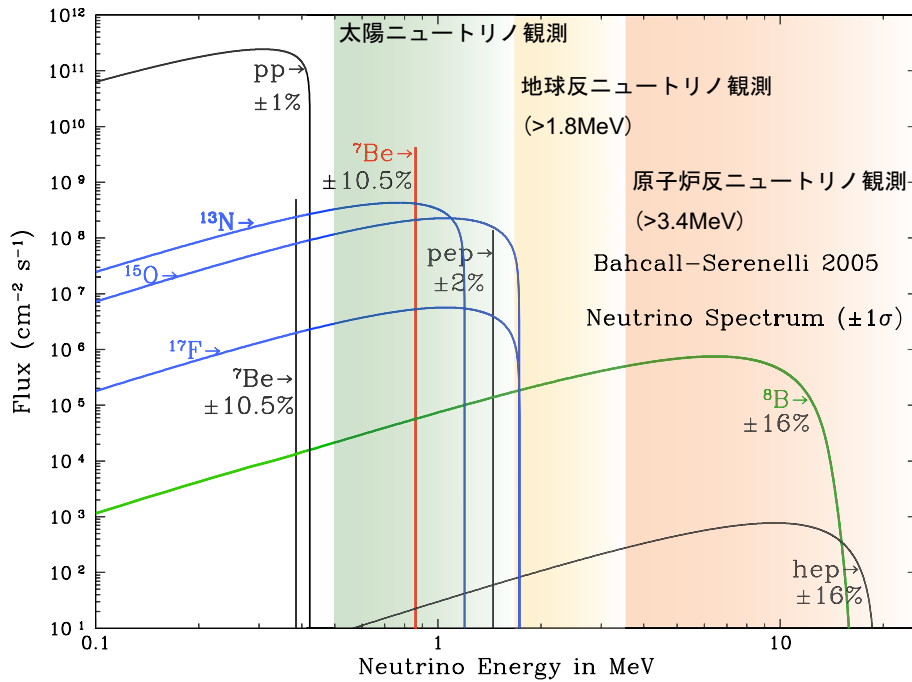


図 2.12: 太陽ニュートリノスペクトラムと KamLAND における閾値

振動解の制限は SSM によるフラックスの誤差が  $\pm 10.5\%$  についているため、残念ながら飛躍的な改善は望めない。しかし逆に  ${}^7\text{Be}$  精密測定により実験誤差の大幅な削減を達成すれば、現在のグローバル解析による振動解の制限から SSM への要請が行える可能性がある。

#### 季節変動

グローバル解析の結果から  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの季節変動を含む VAC 解は排除されているが、その再確認を行うことができる。また方向情報を持たない KamLAND にとっては、太陽と地球の距離によるニュートリノの量の変動をみることによって測定したニュートリノが太陽からのニュートリノであるという検証を行うことができる。さらに、 ${}^7\text{Be}$  観測が高統計であるならば、季節変動によるバックグラウンドの推量を行うことが可能となる。これは地球の公転軌道の離心率  $1.7\%$  を利用するものである。太陽と地球の距離の変動は式 2.24 のように書ける。これにより、夏と冬の太陽と地球の距離の変動はおよそ  $3.4\%$  となる。

$$L = L_0(1 - \epsilon \cos(2\pi t)) \quad (2.24)$$

$$\text{離心率 } \epsilon = 0.0017 \quad (2.25)$$

$$\text{地球と太陽の距離 } L_0 = 1.496 \times 10^8 [\text{km}] \quad (2.26)$$

ニュートリノのフラックスは距離の二乗に比例することから

$$S \frac{1}{L^2} = S \frac{1}{L_0^2(1 - \epsilon \cos(2\pi t))^2} \quad (2.27)$$

$$= S \frac{1}{L_0^2(1 - 2\epsilon \cos(2\pi t) + \epsilon^2 \cos^2(2\pi t))} \quad (2.28)$$

$$\epsilon^2 \simeq 0 \quad (2.29)$$

$$= S \frac{1}{L_0^2(1 - 2\epsilon \cos(2\pi t))} \quad (2.30)$$

$$S' = S \frac{L_0^2}{L^2} = S(1 + 2\epsilon \cos(2\pi t)) \quad (2.31)$$

$$(2.32)$$

バックグラウンドを  $B$  とおくと、観測値  $N$  は

$$N = B + S(1 + 2\epsilon \cos(2\pi t)) \quad (2.33)$$

と書ける。この式からわかるように、ニュートリノの量は変動するが、バックグラウンドの量は変動しない。季節変動によるフラックスの変化は、およそ 6.8% となり、これによりバックグラウンドの割合を知ることができる。

$^8\text{B}$  ニュートリノ観測から期待されること

MSW 効果の検証

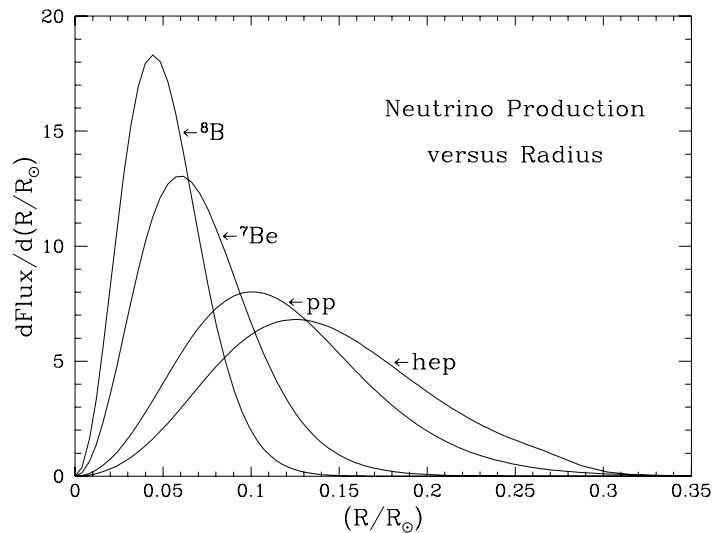


図 2.13: 太陽の内部での各ニュートリノの生成 [7]

MSW 効果は高いエネルギーを持つニュートリノに感度がある。図 2.13 から pp、 ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^8\text{B}$  の各ニュートリノの生成点における電子密度はニュートリノにより異なる値を持つ。このことから MSW 効果を起こすエネルギー  $E_{critical}$  は共鳴条件から

$$\Delta m^2 \cos 2\theta (\text{eV}^2) \simeq 1.5 \times 10^{-7} \left( \frac{E_{critical}}{\text{MeV}} \right) \left( \frac{\rho}{\text{gr/cm}^3} \right) \quad (2.34)$$

$$\begin{aligned} E_{critical}(pp) &\simeq 3.3 \text{MeV} \\ E_{critical}({}^7\text{Be}) &\simeq 2.2 \text{MeV} \\ E_{critical}({}^8\text{B}) &\simeq 1.8 \text{MeV} \end{aligned} \quad (2.35)$$

となる。pp、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノのエネルギーはこのエネルギーを下回るため、常に真空振動の領域にあり MSW 効果には感度がない。一方  ${}^8\text{B}$  は物質振動の領域にあり MSW 効果が起こっていると考えられる。 ${}^8\text{B}$  ニュートリノは SK、SNO などのリアルタイム検出器によりすでに精度良く観測されているが、両実験ともエネルギー閾値の高さから MSW 効果の検証は行えていない。現在の KamLAND における  ${}^8\text{B}$  ニュートリノの観測領域は  ${}^{208}\text{Tl}$  の影響がなくなる約 5.5MeV 以上であるが、液体シンチレーターの純化により  ${}^{208}\text{Tl}$  の親核である半減期 1.913year の  ${}^{228}\text{Th}$  以上の放射性物質を除去できたならば、観測領域を 5MeV 以下に下げることが可能となり、 ${}^8\text{B}$  ニュートリノの MSW 効果によるスペクトルの立ち上がりを観測できる可能性がある。今現在ニュートリノ振動の最も有力な解釈である MSW 効果を実験的に直接観測することで、太陽ニュートリノ問題の有力な解である物質中でのニュートリノ振動の直接の証拠を得ることが可能となる。また MSW 効果をもたらす物質中でのニュートリノ振動においては式 2.34 にあるように太陽内部での電子数密度をもちいるが、この値は SSM により求められている。MSW 効果の検証により太陽内部の電子数密度の観点から SSM の検証が行えるかもしれない。さらに現在のグローバル解析では KamLAND の反電子ニュートリノの結果も含めているが、統計量が高くなり太陽ニュートリノ実験のみで振動解が精度良く決まれば、太陽ニュートリノ実験のみで求めた太陽ニュートリノの振動解と KamLAND の反電子ニュートリノの振動解の比較もできるようになる。

## CNO ニュートリノと pep ニュートリノ観測から期待されること

### SSM の検証

CNO ニュートリノは全太陽ニュートリノの 1.5% と非常に寄与の少ないニュートリノであり、未だ分離検出されたことはない。また最新のバコールによる太陽ニュートリノフラックスの計算 (BS2005) [7] によると、原子核の実験による S ファクターの改善により、CNO サイクルからのフラックスは BP2004 のデータからおよそ半分程度となっている。このように SSM のもつ理論的不定性も大きいため、このニュートリノの検出では、まず第一に SSM により 1.5% と仮定されている CNO サイクルが実際に太陽内部で起こっているのかを検証することにある。KamLAND では  ${}^7\text{Be}$  と CNO と pep ニュートリノはほぼ同じ領域で観測されるため、 ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの精密測定を待つ必要があるかもしれないが、もし観測されれば、CNO ニュートリノの検証を行うだけでなく、塩素実験やガリウム実験で検出された CNO ニュートリノの結果と合わせフラックスの実験誤差の縮小も見込まれる。

## 第3章 KamLANDにおける太陽ニュートリノ観測

### 3.1 KamLAND 検出器

ここでは、KamLAND の検出器全体について述べる。

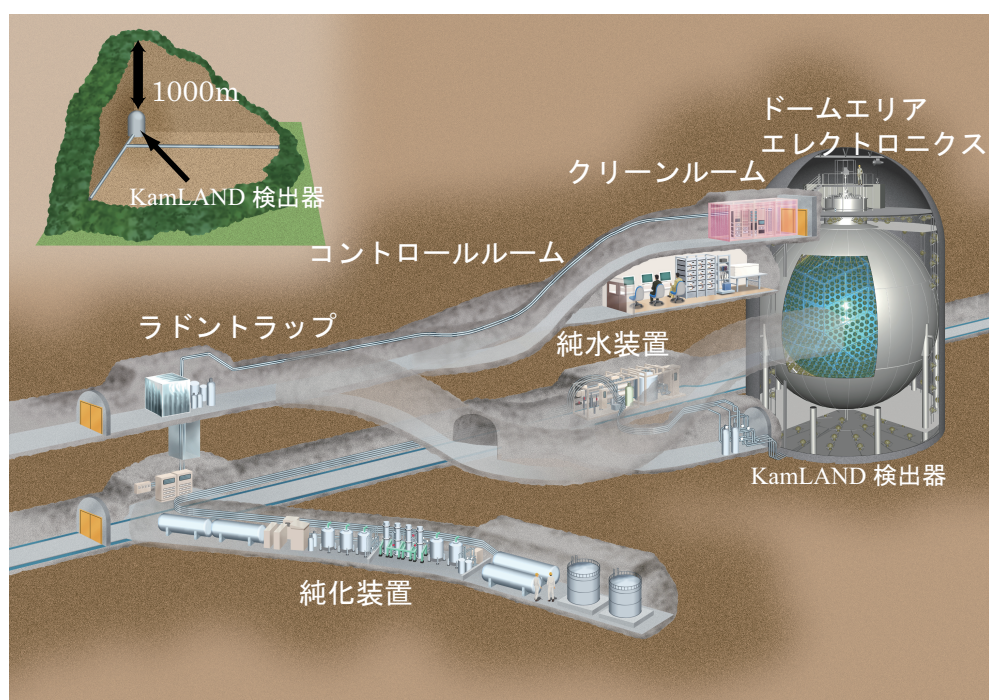


図 3.1: KamLAND 検出器と神岡鉱山内部

KamLAND 検出器は岐阜県神岡町の神岡鉱山の池ノ山の地下 1000 メートルに掘られた直径 20 メートル、高さ 20 メートル円筒形の内部に納められている (図 3.1)。地中深くにおくことにより、大きなバックグラウンドとなる宇宙線 (宇宙空間を飛んで来た高いエネルギーの陽子などが、地球の空気の原子核と衝突して壊し、その結果発生したミュ - 粒子などの素粒子) を土や岩で遮蔽することができ、フラックスは地上の 10 万分の 1 となる。



### 3.1.1 検出器本体

KamLAND の検出器の主要部は直径 18m の 3000m<sup>3</sup> のステンレスの球形タンクと、その球形タンクが納まる円筒形の部分からなる (図 3.2)。球形タンクの内部の部分インナーディテクター (ID) と呼び、円筒形タンクの部分をアウターディテクター (OD) と呼んでいる。これから、その役割と現在の状況について述べる。

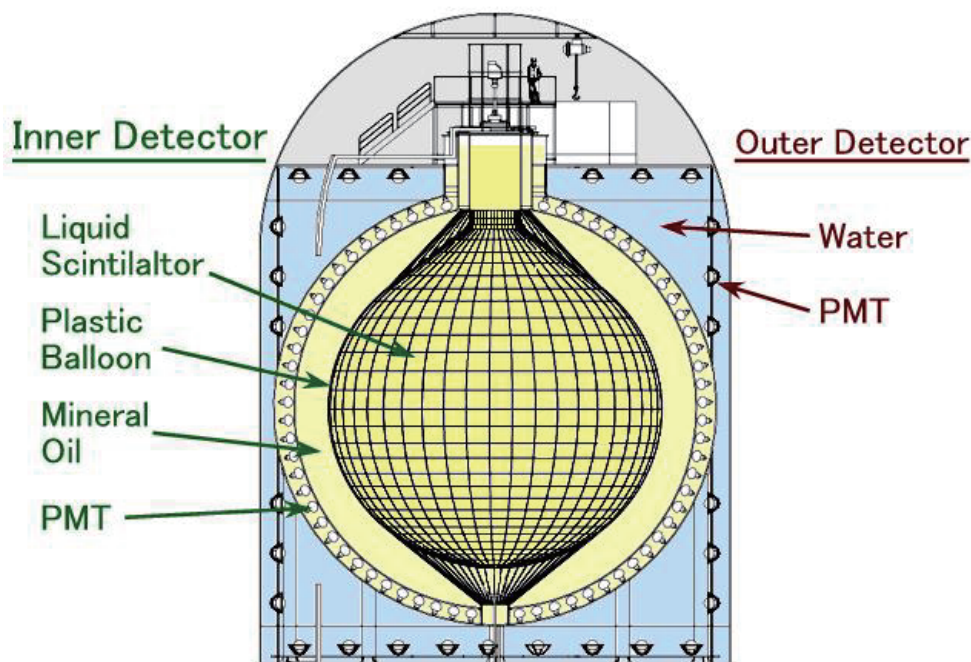


図 3.2: KamLAND 検出器

#### ID

ID の中心には、ニュートリノ反応のターゲットとなる液体シンチレーター 1000 トンが直径 13m のバルーンに満たされ、厚さ 2.5m の光を出さないパラフィンオイルのバッファーオイル層の中に紐で吊るされている。バルーンは放射性ガスである <sup>222</sup>Rn の遮蔽能力に優れているエバル (EVOH: ポリビニールアルコール) を両面にして、強度、透明度を備えたナイロン 3 層を挟んだ合計 5 層の積層構造となっており、135 ミクロン厚のフィルムとなっている。このフィルムは 400nm の光に対し、96% の光透過率を持つ。バルーンをバッファーオイル層に吊るしているロープは、ケブラーと呼ばれる強靱な繊維である。これをスイカ用のネットのようにして編み、そこにバルーンが収められている。バルーンにかかる重量は内側の液体シンチレーターと外側のバッファーオイルの密度差により決まる。現在、密度差は 0.01% 程度で制御され、バルーン全体にかかる重量は 100kg 程度となっている。そしてこれを保つように、ケブラーにかかるの重さは常にモニターされている。バルーンとバッファーオイル層の外側には透明なアクリルの板が取り付けられている。このアクリル板によりステンレスタンクや光電子増倍管、ケーブルなどに触れたオイルがバッ

ファーオイルと交じり合わないようになっている。アクリル板の内側には 1879 本の光電子増倍管 (図 3.4) が取り付けられており、全フォトカソード領域は 17 インチ、20 インチ合わせた場合で表面積の 34%、17 インチのみでも 22% を占める。本実験での純化の対象となるのはこの ID の液体シンチレーター層とバッファーオイル層である。現在 KamLAND では、 $4\pi$  と呼ばれるキャリブレーションが計画されている。 $4\pi$  ではバルーンの内部で線源をつけたアームをあらゆる方向に向けることが可能になる。これにより、従来の球形のバルーンの中心部鉛直方向だけのキャリブレーションから、任意の位置 (方向、中心からの距離) でのキャリブレーションが可能となり、位置分解能、エネルギー分解能の改善による系統誤差の縮小が期待される。

## OD

球形のステンレスタンクと直径 19m、高さ 20m の円筒形の間を OD と呼ぶ。OD は超純水で満たされた  $3000\text{m}^3$  の外水槽となっており、20 インチ PMT が 225 本取り付けられた水チェレンコフ宇宙線検出器である。OD の外壁である岩盤からの  $^{222}\text{Rn}$  の溶け込みを防ぐため、岩盤表面はポリウレタン樹脂で覆われている。この水チェレンコフ宇宙線検出器では、検出器外部から飛来したミュオンなどの放射線により生じたチェレンコフ光を、20 インチ光電子増倍管で観測する。これにより検出器外部からのバックグラウンドを識別できる。KamLAND のような大容量のターゲットを用いた実験では、特に外部からの宇宙線ミュオンの検出が重要となる。ミュオンは、通過時に原子破砕反応を起こし不安定核 ( $^{11}\text{C}$ 、 $^{12}\text{C}$ 、 $^7\text{Be}$  など) を生成する。不安定核は数十秒から数十日の寿命を持ち崩壊してバックグラウンドの形成する。そのためバックグラウンドの除去には、OD によりミュオンを識別する必要がある。不安定核によるバックグラウンドについては、3.3 節の「現在のバックグラウンドと将来の目標値」で述べる。さらにこの検出器は外部からの放射線によるバックグラウンドの識別を行うだけでなく、周囲の岩盤中で生成して検出器に入射した  $\gamma$  線や中性子を減衰させることにより、環境放射線を遮蔽する役割も持つ。

### 3.1.2 液体シンチレーター

KamLAND ではターゲットとして液体シンチレーターと呼ばれる有機溶媒からなる液体状のシンチレーターを使用している。直径 13m、重量にして 1000ton という大量の液体シンチレーターを前述のバルーンに収めている。シンチレーターの性質として、荷電粒子がその物質中を通ると通過したまわりの物質が励起され、最終的にはそのエネルギーが光となって放出される。シンチレーターの微弱な光を 13 メートル先の PMT までなるべく減衰させずに到達させるためには、非常に高い透過度 (光減衰長 (400nm)  $\geq 12\text{m}$ ) と発光量 (300p.e./MeV) が要求される。この要求からさまざまな組み合わせが検討された結果、KamLAND の液体シンチレーターはプソイドクメン 20%、ノルマルパラフィン 80%、PPO (発光剤・2,5-ジフェニルオキサゾール) 1.5g/l の割合で構成されている。図 3.3 に各成分を示した。またバッファーオイル層にはイソパラフィン ( $\text{C}_{12}\text{H}_{26}$ ) とノルマルパラフィン ( $\text{C}_{14}\text{H}_{30}$ ) の混合物が使用されている。現在の KamLAND では太陽ニュートリノ観測に向け、バルーン内部に満たしてある液体シンチレーターを蒸留法、窒素パージにより純化することを目標にしている。

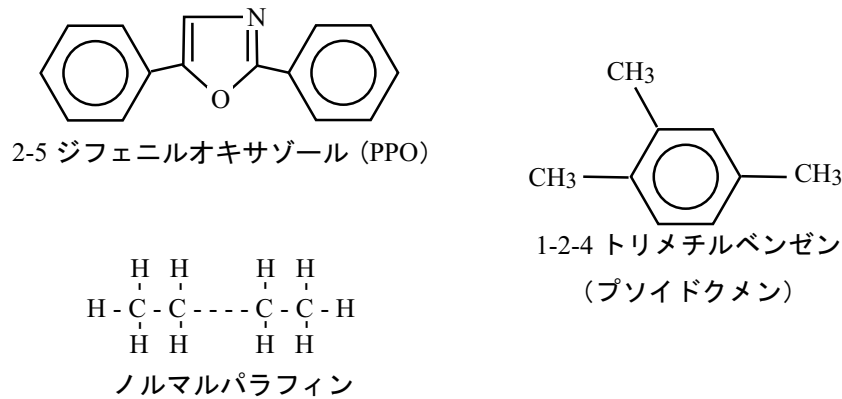


図 3.3: 液体シンチレーターの構成物質

### 3.1.3 光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube:PMT)

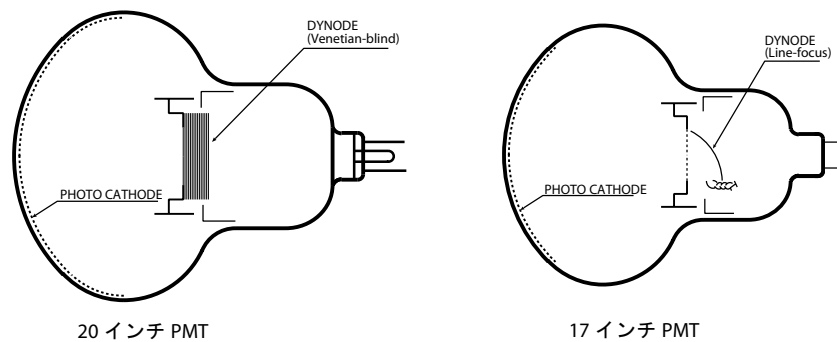


図 3.4: KamLAND の検出器に取り付けられている光電子増倍管 (PMT) :左が 20 インチ PMT、右が 17 インチ PMT

光電子増倍管は微弱な光 (シンチレーション光) を電子に変換し、その数を倍増して電気信号として取り出す検出器である。KamLAND では Kamiokande 実験から譲り受けた口径 20 インチの光電子増倍管 (ID-554 本: OD-225 本) と KamLAND 実験の為に開発された口径 17 インチ光電子増倍管 (ID:1325 本) の 2 種類を使用している (図 3.4)。光電子増倍管の主な構成要素は、光電面、ダイノード、プリーダー回路である。ここでは 17 インチ光電子増倍管の構造についてまとめる。

- 光電面

入射した光により電子を放出する役割をもつ。光電面のガラスの内側には、光電効果が起こりやすいアルカリ金属を主としたバイアルカリ (Sb-K-Cs) がコーティングしてある。この光電面から放出された光電子は、次に内部の印加している電場によりダイノードへと集まる。

- ダイノード

光電面から電場によりダイノードへと収束された光電子は、ここで新たに数個の二次電子を放出する。この電子を倍増するダイノードは 10 段あり、次々と電子の数は増幅される。17

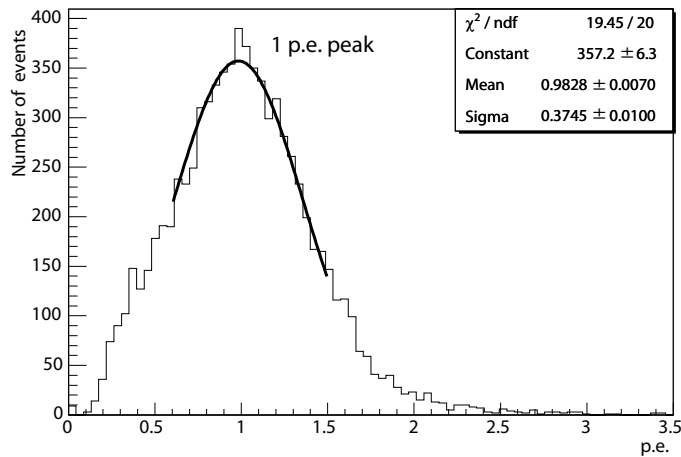


図 3.5: 17 インチ PMT の 1p.e イベント

インチでは後部の 9 段については、高速時間応答特性に優れたラインフォーカス型が採用されている。

- プリーダ回路

外部電源から供給される高電圧を光電面、ダイノード、陽極面に分配する回路をプリーダ回路と呼ぶ。17 インチで採用しているテーパプリーダ型の回路では、電子数密度が大きくなる最終段付近において抵抗を大きくし、電子流の流れを妨げないようにしている。これにより大光量のイベントの際にも、出力の飽和を防ぐことができる。

20 インチ光電子増倍管は前述したように、Kamiokande 実験の際に開発されたものであり、耐水性を持つが耐油性がないなど、液体シンチレーターを用いた KamLAND 実験においては問題点があった。そのため KamLAND 用に新たに開発された 17 インチ PMT では以下のような点が改良された。

- 時間特性の悪い 20 インチ周縁部のマスキング
- ダイノードの形状：ベネチアン・ブラインド型 → ラインフォーカス型
- プリーダ回路：等分割プリーダ回路 → テーパープリーダ回路
- 液体シンチレーターに対する耐性 (耐油性)  
プリーダ回路をエポキシ系の樹脂でアクリル容器内に密封後、ベースに取り付け

これらの改良により、時間分解能、ピーク/バレー比などが向上した。現在の KamLAND ではニュートリノ反応が中心で起きたとき、300p.e.(photo electron)/MeV (17 インチ PMT のみ使用)、500p.e.(photo electron)/MeV (17 インチ、20 インチ PMT 使用) 程度の光電子信号が期待される。このことは光電子増倍管 1 本につき 1p.e. の光電子信号を識別できることを要求する。17 インチ PMT で 1p.e. を測定したものを図 3.5 に示す。

### 3.1.4 エレクトロニクス・トリガー

KamLAND では約 2100 本の PMT から送られてくるデータを処理するために独自開発したフロントエンドエレクトロニクス (FEE) を用いている (図 3.6)。1 枚の FEE には 12 本の PMT が接続され、20 枚ごと 10 台のクレートに収められ、接続している全ての PMT の波形を記録している。PMT からデータはサンプリング間隔 1.5ns、サンプル幅 10bit で 128 個取られており、1 つの信号で約 200ns のデータを取り、その大きさは約 256byte となる。PMT の信号は 1p.e. から、宇宙線ミュオン電磁シャワーにより  $\sim 100000$ p.e. になるものまでである。サンプル幅が 10bit であることから、波形の大きさごとにその分割する幅を変える必要がある。そのため KamLAND では波形ごとの増幅の幅として、3 つ (0.5、4、20 倍) が用意されている。増幅後は ATWD (Analog Transient Waveform Digitizer) と呼ばれるチップに送られ AD 変換される。ATWD は AD 変換中の不感時間を減らすため全チャンネルに 2 系統ずつ用意されており、近接した 2 つのイベントデータを取ることができるようになっている。トリガーは各チャンネルごと取り付けられたディスクリミネータにおいて、閾値を超えた時に出される信号の和 ( $N_{\text{sum}}$ ) から発行される。各 PMT のヒット情報は FPGA (Field Programmable Gate Array) チップでデジタルに処理して行われている。現在の KamLAND では通常エネルギー閾値約  $\sim 0.8\text{MeV}$  ( $N_{\text{sum}}=200$ ) の主トリガーと、そのあと 1ms の間、エネルギー閾値約  $\sim 0.5\text{MeV}$  ( $N_{\text{sum}}=170$ ) に下げる遅延トリガーを使ってデータを取っている。

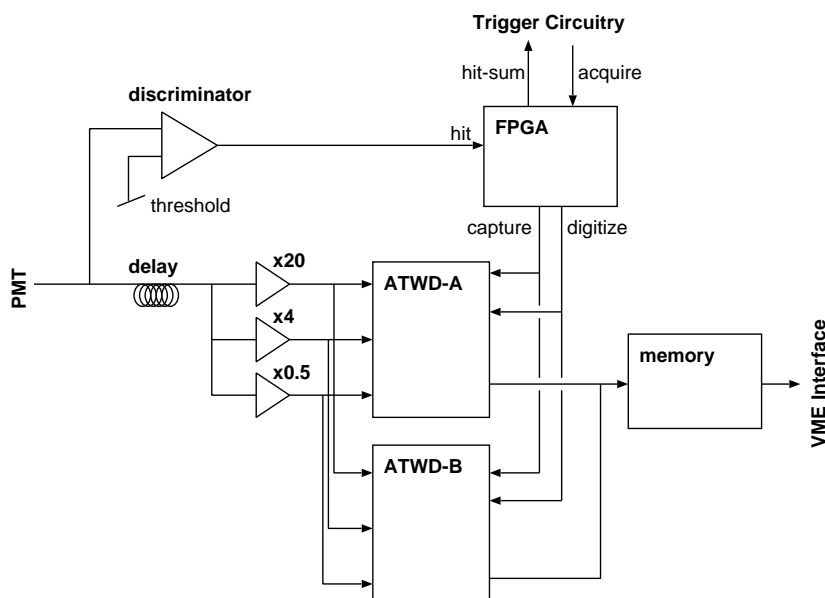


図 3.6: KamLAND でのトリガー回路

### 3.1.5 純化装置

現在の KamLAND の純化装置について述べる。現在の純化装置設備は KamLAND 建設当時に液体シンチレーター純化のため建設され、現在の液体シンチレーターはこれらの純化装置を通したのち KamLAND へと投入されている。純化はフィルターによる濾過と液液抽出法、窒素パージにより行われた。液液抽出とは、超純水に液体シンチレーターを通すことで、水分子の極性によりオイル中の金属イオンやイオン分子を吸着除去する方法である。操作は図 3.7 のように上方から水を、下方からオイルをいれる。内部には流れを妨げるように板が設置されており、水とオイルを攪拌する役割を持つ。またオイルは細かい穴に通すことによりオイルの粒が小さくなり、水との接触面が増える。このようにしてオイルから水への不純物質の移動効率をあげている。この操作の後、液体シンチレーター中から水分や酸素を除去するため窒素パージが行われている。液液抽出とパージ設備は図 3.7 のようになっている。表 3.1 に KamLAND で使用された原料の U、Th、K の量の含有量と純化操作後の液体シンチレーターの値を示した。純化後の液体シンチレーターの値は KamLAND 検出器の実際の測定によるもので、その手法については、3.3 節で述べる。前述した一連の純化操作により、世界でも最高レベルの極低放射線環境を実現した。

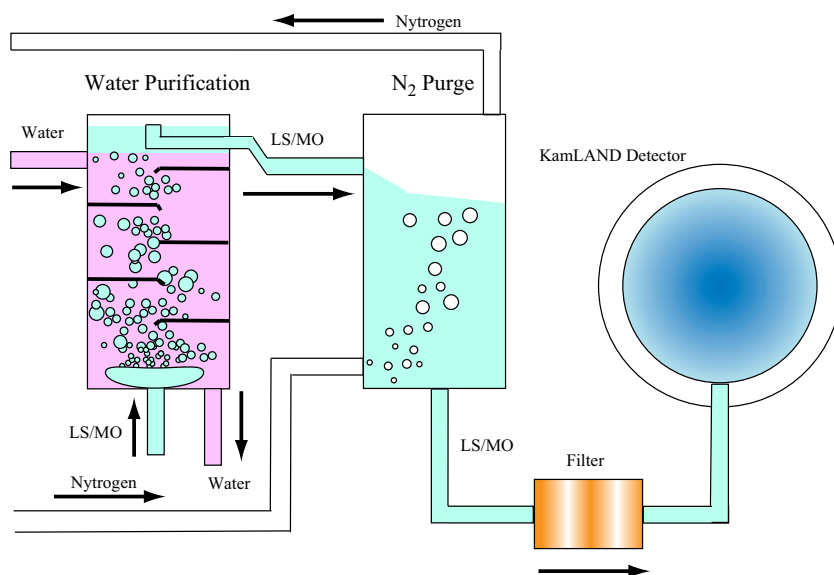


図 3.7: KamLAND 純化装置：左の図が液液抽出塔、右の図が窒素パージ塔

	U[g/g]	Th[g/g]	K[g/g]
IP(Paraol250)	$3 \times 10^{-13}$	$\leq 6 \times 10^{-12}$	-
NP(N12D)	$\leq 1 \times 10^{-13}$	$\leq 6 \times 10^{-12}$	$\leq 1.2 \times 10^{-12}$
PC(Cosmo)	$\leq 1 \times 10^{-13}$	-	-
PPO(Packard)	$1.2 \times 10^{-11}$	$\leq 5 \times 10^{-11}$	$5.3 \times 10^{-11}$
LS(純化後)	$(3.4 \pm 0.4) \times 10^{-18}$ ( $^{226}\text{Ra}$ - $^{210}\text{Pb}$ )	$(5.7 \pm 0.8) \times 10^{-17}$	$2.7 \times 10^{-16}$

表 3.1: KamLAND の液体シンチレーター成分の U、Th、K の含有量 (ICPMS により測定) [13]

## 3.2 KamLAND における太陽ニュートリノ観測

ここでは前述の KamLAND 検出器における太陽ニュートリノ観測の方法、期待される事象数、観測に当たって障害となるバックグラウンドについて述べる。

### 3.2.1 KamLAND における反応プロセス

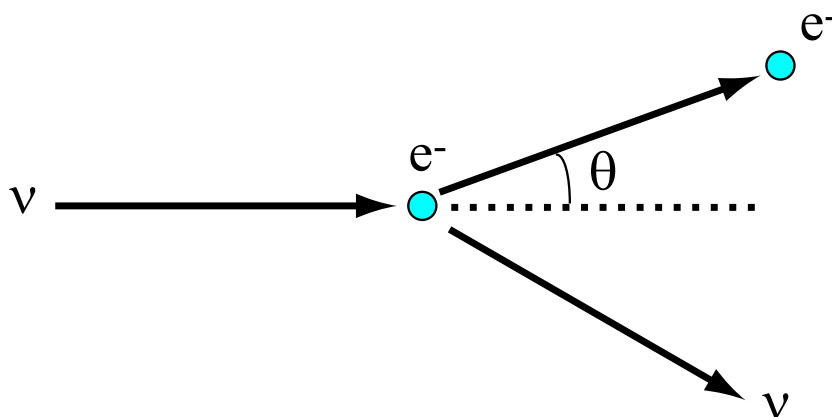


図 3.8:  $\nu_e - e$  散乱

KamLAND での太陽ニュートリノ観測における期待されるニュートリノイベントを見積もる。液体シンチレーターがターゲットである KamLAND においては、 $\nu$ - $e$  の弾性散乱によってニュートリノを観測する。図 3.8 のように KamLAND の液体シンチレーターに入射したニュートリノは電子と弾性散乱して、シンチレーション光を出す。KamLAND ではこの時のシンチレーション光を PMT により捕らえる。

この時の電子の反跳エネルギー  $T_e$  は、反跳角度を  $\theta$  として

$$T_e = \frac{\frac{2E_\nu^2}{m_e} \cos^2 \theta}{\left(1 + \frac{E_\nu}{m_e}\right)^2 - \left(\frac{E_\nu}{m_e}\right)^2 \cos^2 \theta} \quad (3.1)$$

と書ける。電子の弾性散乱において電子の散乱角度は

$$\cos \theta = \frac{1 + \frac{m_e}{E_\nu}}{\sqrt{1 + \frac{2m_e}{T_e}}} \quad (3.2)$$

と書ける。また反跳電子のエネルギーは

$$T_e \leq \frac{E_\nu}{1 + \frac{m_e}{2E_\nu}} \equiv T_{max} \quad (3.3)$$

となる。

実験室系における反応断面積は電弱理論に基づいて、

$$\frac{d\sigma}{dT_e} = \frac{G_F^2 m_e}{2\pi} \left[ A + B \left(1 - \frac{T_e}{E_\nu}\right)^2 - C \frac{m_e T_e}{E_\nu^2} \right] \quad (3.4)$$

ここで  $T_e$  は反跳電子の運動エネルギー、 $E_\nu$  はニュートリノエネルギー、 $G_F = 1.16636 \times 10^{-11} \text{ MeV}^{-2}$  はフェルミ結合定数である。パラメーター A、B、C は次のように書ける。

$$A = (g_V + g_A)^2, B = (g_V - g_A)^2, C = g_A^2 - g_V^2 \quad (3.5)$$

$$\nu_e : g_V = 2\sin^2 \theta_W + \frac{1}{2}, g_A = +\frac{1}{2} \quad (3.6)$$

$$\nu_\mu \nu_\tau : g_V = 2\sin^2 \theta_W - \frac{1}{2}, g_A = -\frac{1}{2} \quad (3.7)$$

ここで  $\theta_W$  はワインバーグ混合角で  $\sin \theta_W = 0.23$ 、これより反応断面積  $\sigma_{\nu_e}$  は  $T_e$  を 0 から  $T_{max}$  まで積分して、

$$\sigma_{\nu_e} = \int_0^{T_{max}} \frac{d\sigma}{dT_e} dT_e = \frac{G_F^2 m_e}{2\pi} \left[ AT_{max} + \frac{BE_\nu}{3} \left[ 1 - \left( 1 - \frac{T_{max}}{E_\nu} \right) \right]^3 - \frac{C}{2} \frac{m_e T_{max}^2}{E_\nu^2} \right] \quad (3.8)$$

と書ける。

### 3.2.2 期待される信号 スペクトル

KamLAND において電子弾性散乱におけるニュートリノのターゲットである  $e^-$  を求める。表 3.2 は、KamLAND 液体シンチレーター中に存在する原子の数とその自然存在比をまとめたものである。

原子	総数/kton	原子核	自然存在比	存在比数/kton
H	$8.470 \times 10^{31}$	$^1\text{H}$	0.99985	$8.469 \times 10^{31}$
		$^2\text{H}$	0.00015	$1.271 \times 10^{28}$
C	$4.302 \times 10^{31}$	$^{12}\text{C}$	0.98900	$4.255 \times 10^{31}$
		$^{13}\text{C}$	0.01100	$4.732 \times 10^{29}$
N	$1.593 \times 10^{28}$	$^{14}\text{N}$	0.99634	$1.587 \times 10^{28}$
O	$7.064 \times 10^{27}$	$^{16}\text{O}$	0.99762	$7.047 \times 10^{27}$

表 3.2: 液体シンチレーター内の各原子数

表 3.2 の各原子核に対して

$$\text{原子核中の電子数} \times \text{総数/kton} \times \text{自然存在比} \quad (3.9)$$

$$\text{ターゲットとなる } e^- \text{ の数} = 3.43 \times 10^{32} [\text{electrons/kton}] \quad (3.10)$$

これらから KamLAND での SSM での測定予想値を表 3.3 まとめる。

有効体積を中心から半径 4m の球とした場合、ターゲットとなる電子の数は次のようになる。

$$\text{有効体積} = \frac{4}{3} \pi r^3 = 268.1 [\text{m}^3] \rightarrow 0.206 \text{ kton} \quad (3.11)$$

$$\text{ターゲットとなる } e^- \text{ の数} = 7.08 \times 10^{31} [\text{electrons/fiducial}] \quad (3.12)$$



ニュートリノ	フラックス (SSM)[ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ] [1]	$\sigma_{\nu_e-e}$ [ $10^{-46}\text{cm}^2$ ]	SSM events/day/kton
pp	$5.91 \times 10^{10}$	11.6	2031.7
${}^7\text{Be}(0.862\text{MeV})$	$5.15 \times 10^9$	57.9	883.6
${}^8\text{B}$	$6.62 \times 10^6$	594	11.7
${}^{13}\text{N}$	$6.18 \times 10^8$	45.8	83.9
${}^{15}\text{O}$	$5.45 \times 10^8$	70.8	114.4

表 3.3: SSM から予想されるイベントレート

これを用いて有効体積4mの球の時の、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノフラックス(SSM)は182.4[events/day/fiducial]となる。次にニュートリノ振動した場合について考える。 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのエネルギーは、反応の終状態が ${}^7\text{Li}(\gamma)$ と $\nu_e$ であることから、単色のニュートリノエネルギー(0.862(90%)、0.383(10%))を持つ。物質中でのニュートリノ振動を考える場合、生成領域での太陽の電子密度を考慮しなければならない。 ${}^7\text{Be}$ は $0.06R_\odot$ で生成される(図 2.13)。しかし太陽の質量効果は極めて小さいことから ${}^7\text{Be}$ は真空での振動として考える。LMAでは、 $\tan^2 \theta_{vac}$ 、 $\Delta m^2$ はKamLANDを含めたグローバル解析の結果をもちいる。 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのエネルギー $E_{{}^7\text{Be}}=0.862[\text{MeV}]$ である時、

$$\begin{aligned}
 P_{\nu_e \rightarrow \nu_e} &= 1 - \frac{1}{2} \sin^2 2\theta_{vac} & (3.13) \\
 \tan^2 \theta_{vac} &= 0.4 \\
 \Delta m^2 &= 7.9 \times 10^{-5}
 \end{aligned}$$

より $P_{\nu_e \rightarrow \nu_e} = 0.592$ となり、KamLANDで観測できるイベント数は108.0[events/day/fiducial]となる。次にバックグラウンドを見積もる。

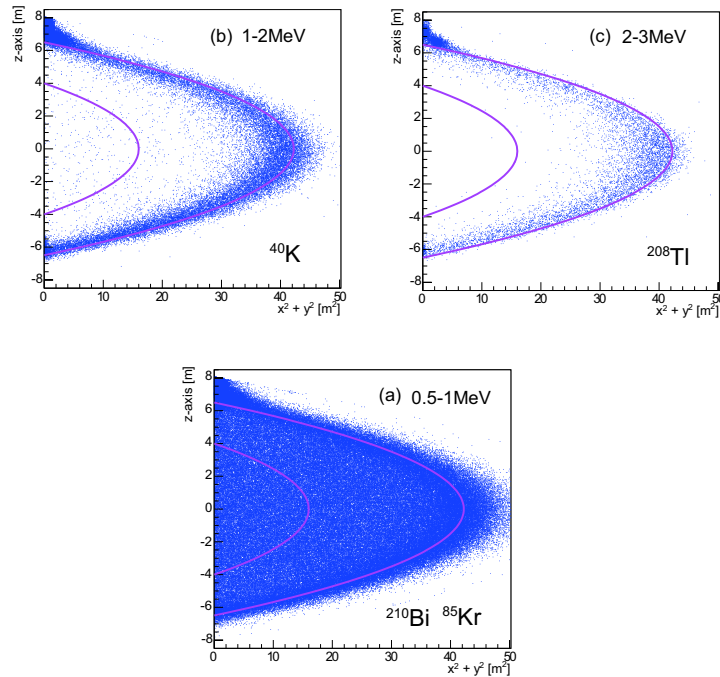


図 3.9: イベントと位置の相関：内側の線は有効体積 4m の領域を示し、外側の線は 6.5m の領域を示す

### 3.3 現在のバックグラウンドと将来の目標値

ここではまず現在の KamLAND における主要なバックグラウンドについて述べ、さらに太陽ニュートリノ観測において障害となる、低エネルギー領域でのバックグラウンドの見積もりを行う。その後、現在のバックグラウンドから将来の太陽ニュートリノ観測に向けて要求される純化の目標値について述べる。

#### 3.3.1 現在のバックグラウンド

KamLAND では現在、原子炉や地球からの電子型反ニュートリノを主な観測対象としている。電子型反ニュートリノの逆  $\beta$  崩壊反応は、遅延同時計測により観測されるため、エネルギーと位置のカットによりバックグラウンドを大幅に削減することが可能であった。しかし次期計画の太陽ニュートリノ観測においては、電子とニュートリノの弾性散乱であるため、シングルバックグラウンドを減らすことが重要な課題である。また 0.862MeV の  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノを観測するため、解析閾値を  $\approx 0.5\text{MeV}$  まで下げなければならない。図 3.9 に低エネルギー領域でのイベントの位置の相関を示した。図 3.9 の (a) が示すように、KamLAND での太陽ニュートリノ観測における最大の問題点は 1MeV 以下の低エネルギー領域のバックグラウンドである。図 3.10 に低エネルギー領域での各スペクトルを示した。これにより、特に U 系列の  ${}^{210}\text{Pb}$  と  ${}^{85}\text{Kr}$  からのバックグラウンドは深刻であることがわかる。次に各バックグラウンドの見積もり方法とその値を述べる。

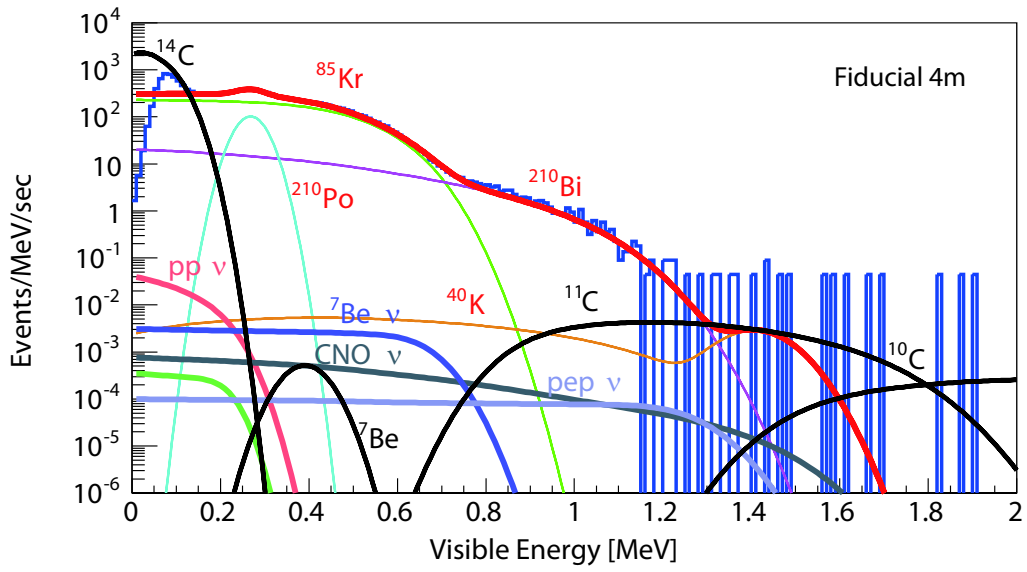


図 3.10: 現在の KamLAND の低エネルギー領域でのスペクトル

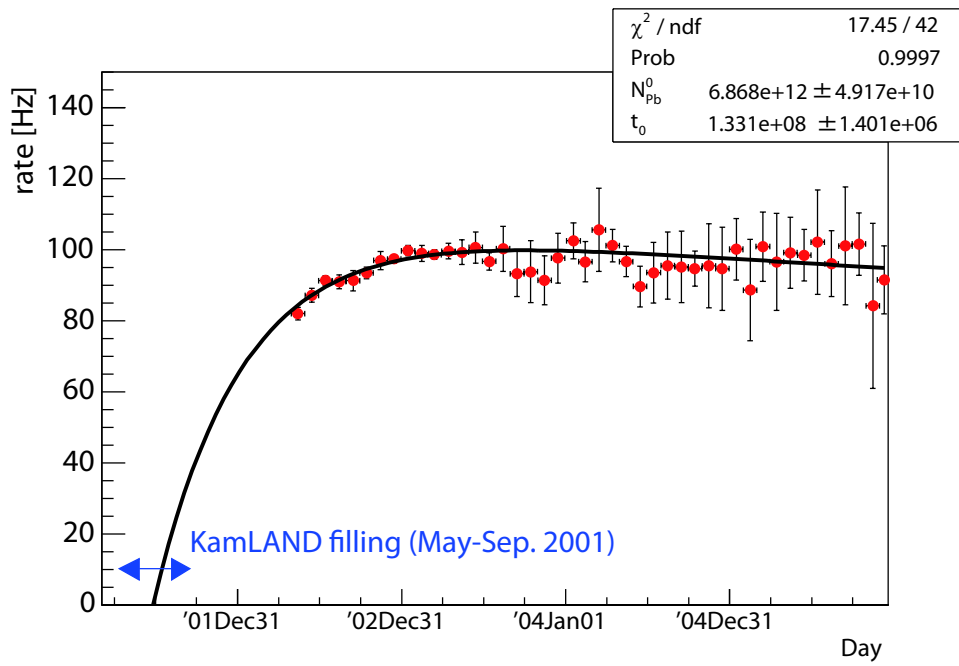
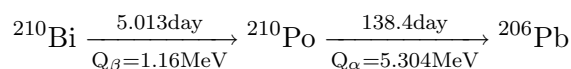


図 3.11:  $^{210}\text{Po}$  のカウントレート—[14]

### 3.3.2 $^{210}\text{Pb}$

本研究の研究対象である  $^{210}\text{Pb}$  は希ガスとして自然界に存在する  $^{222}\text{Rn}$  の下流に位置し、崩壊過程は下記ようになる。



この反応は  $^{210}\text{Po}$ - $^{210}\text{Pb}$  の時間相関が 138.4 日と長いため、遅延同時計測により見積もることができない。そのため  $^{210}\text{Pb}$  の量は  $^{210}\text{Po}$  のイベントレートから見積もられる [14]。KamLAND のデータ開始からすでに 5 年が経っており、またその間検出器内部は  $^{222}\text{Rn}$  を含む外気からは遮断されて保たれているため半減期 22.3 年の  $^{210}\text{Pb}$  の娘核である  $^{210}\text{Po}$  のカウントレートは、放射平衡より一定になっていると思われる。それを示したのが図 3.11 である。崩壊曲線で  $^{210}\text{Po}$  のカウントレートをフィットした結果から、 $^{210}\text{Pb}$  の混入時期はおよそ建設時の KamLAND の液体シンチレーターを入れた時期と一致する。現在の KamLAND での  $^{210}\text{Po}$  の量は、270keV 付近の  $^{214}\text{Po}$  の  $\alpha$  スペクトルをガウシアンでフィットしてイベント数を見積もる。その結果 33[Bq/fiducial] であることより、放射平衡を仮定した時、 $^{210}\text{Pb}$  の存在量は  $1.5 \times 10^{-20}$ [g/g] となる。

### 3.3.3 $^{85}\text{Kr}$

$^{85}\text{Kr}$  は核燃料再処理によって放出される放射性の希ガスである。 $^{85}\text{Kr}$  は図 3.12 より崩壊分岐比 99.566% で  $\beta$  ( $Q_{\beta} = 687\text{keV}$ ) 崩壊をする。また 0.434% で  $\beta$  ( $Q_{\beta} = 174\text{keV}$ ) 崩壊+ $\gamma$  線 (513keV) を出す。半減期が 10 年と長いため、KamLAND 内部に混入した  $^{85}\text{Kr}$  はバックグラウンドとして存在し続け、 $^7\text{Be}$  ニュートリノ ( $T_{\text{max}} = 665\text{keV}$ ) の観測領域を完全に覆ってしまっている。(図 3.10) 有効体積  $R \leq 5.5\text{m}$  からシングルスペクトルのフィットにより見積もられた  $^{85}\text{Kr}$  の量は  $456 \pm 96$ [mBq/m<sup>3</sup>] となっており、純化での削減目標は 5 桁となっている。

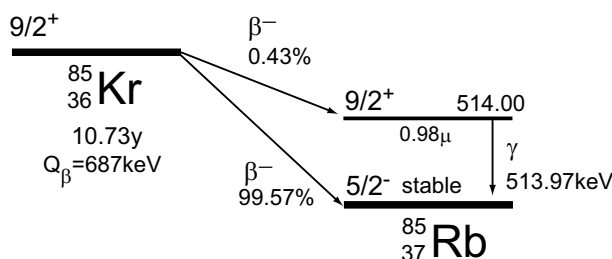


図 3.12:  $^{85}\text{Kr}$  の崩壊図

### 3.3.4 $^{40}\text{K}$

$^{40}\text{K}$ は図3.13のように、 $\beta$ 崩壊または電子捕獲反応の反応をする。 $^{40}\text{K}$ は主にバルーンやそれを支えるケーブル紐、そして液体シンチレーター中、また現在は引き抜いた為存在はしないが、バルーン中心部に吊るされていた温度計などに含まれている。バルーンやケーブル紐の $^{40}\text{K}$ の影響は図3.9の(a)に示したように、その多くがバルーン外縁に集中している。このため1-2MeVの領域では、5mの有効体積にすることでバルーン周辺からのバックグラウンドはほぼなくなる。シングルスペクトルに対して有効体積を減らした時の影響を図示したのが図3.14であり、1[MeV]以上の領域で効果的に減少していることがわかる。しかし内部に存在する $^{40}\text{K}$ は図3.10からわかるように、 $^7\text{Be}$ ニュートリノ観測には十分障害となる量が存在する。図3.15左図はイベント数を有効体積ごとに求めたものである。これによると5m以内の領域でほぼ一定となっており、このイベントが液体シンチレーター中の $^{40}\text{K}$ によるものと考えられる。現在のKamLAND内部における $^{40}\text{K}$ の存在量は、 $^{40}\text{K}$ のシングルスペクトルをフィットする方法から $2.7 \times 10^{-16}[\text{g/g}]$ 存在すると見込まれている。 $^7\text{Be}$ の観測に当たっての $^{40}\text{K}$ の削減は、2桁以上必要とされる。

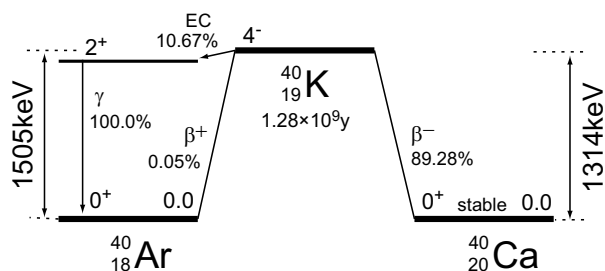


図 3.13:  $^{40}\text{K}$  の崩壊図

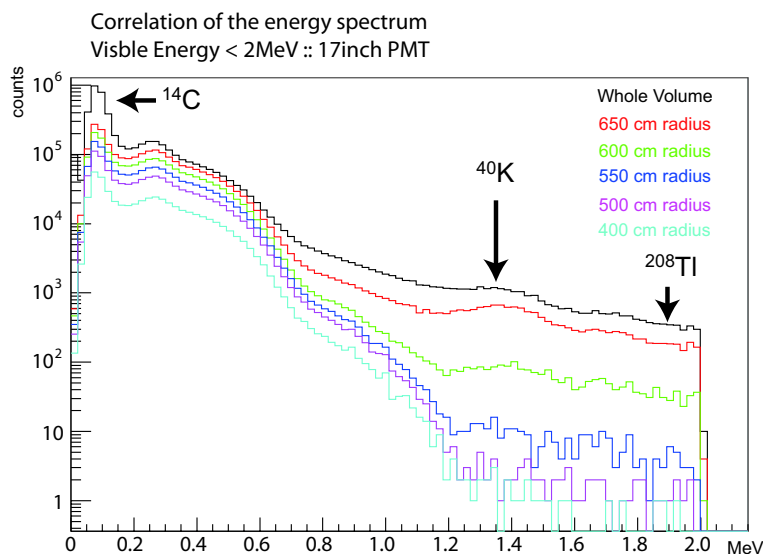


図 3.14: 有効体積とバックグラウンドスペクトルの相関

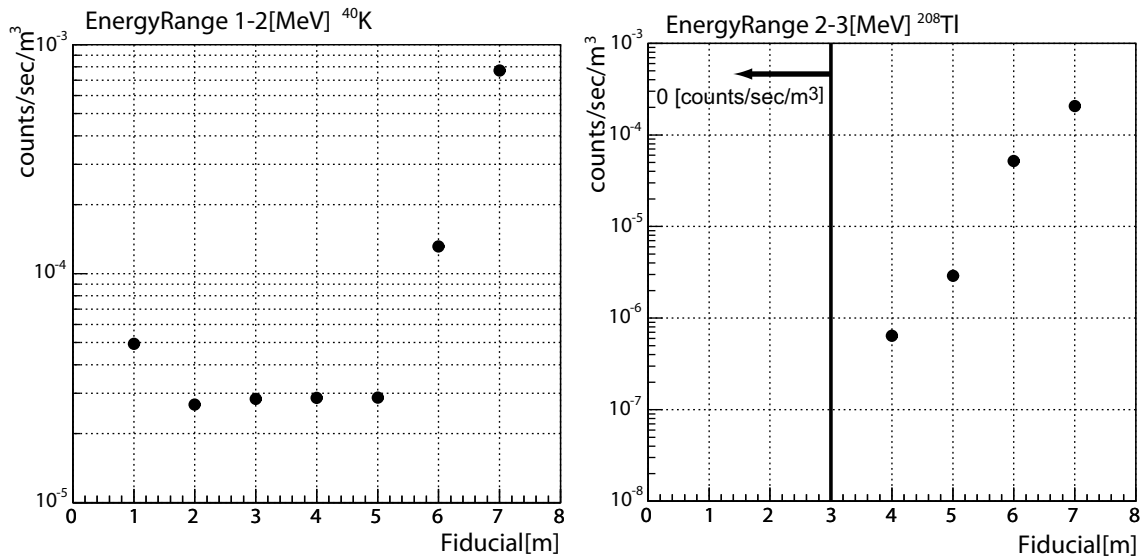


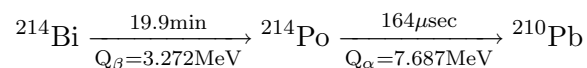
図 3.15: 有効体積とイベントレートの相関：左図の Fiducial 1m でのイベントの増加は温度計によるもの、右図 Fiducial 3m 以下で領域では 0[counts/sec/m<sup>3</sup>]

### 3.3.5 その他

太陽ニュートリノ観測に当たって問題となる原子核破砕反応や、ミューオンからのバックグラウンドについて述べる。

#### U 系列

- $^{238}\text{Ra} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$   
 $^{238}\text{Ra} \rightarrow ^{226}\text{Ra}$  の反応数は  $^{234}\text{Pa}$  の  $\beta$  線をシングルスpekトルのフィットにより上限値として求められ、これより  $\geq 8.61 \times 10^{-5} [\text{Bq}/\text{m}^3]$  となった。
- $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{210}\text{Pb}$   
 U 系列の  $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{210}\text{Pb}$  までの見積もりは下記の崩壊過程より求める。



$^{214}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$  は半減期 164[ $\mu\text{sec}$ ] の相関があるため、遅延同時計測により、KamLAND の観測データ (図 3.16、イベントセレクションは表 3.4 に示した) の結果  $(3.4 \pm 0.4) \times 10^{-18} [\text{g}/\text{g}]$  と見積もられる。

先発信号	$E_{\text{prompt}} \geq 1.3\text{MeV}$
遅延信号	$0.3 \leq E_{\text{delayed}} \leq 1.0\text{MeV}$
時間相関	$5 \leq \Delta T \leq 1000\mu\text{sec}$
空間相関	$\Delta R \leq 1\text{m}$

表 3.4:  $^{214}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$  同時遅延計測のイベントセレクション

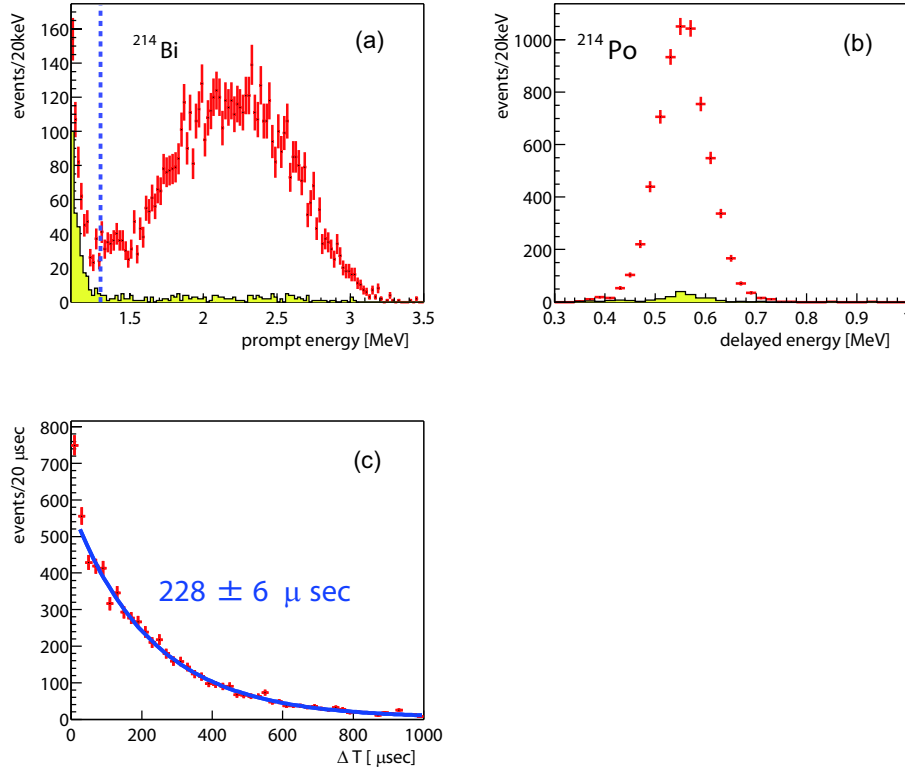
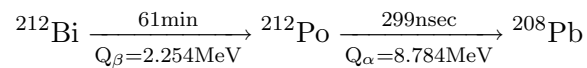


図 3.16:  $^{214}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$  の遅延同時計測

### Th 系列

- $^{232}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$

U 系列の  $^{232}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$  までの見積もりは下記の崩壊過程より求める。



$^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$  は半減期 300[nsec] の相関があるため、遅延同時計測により、KamLAND の観測データ (図 3.17、イベントセレクションは表 3.5 に示した) から  $(5.7 \pm 0.8) \times 10^{-17}[\text{g/g}]$  と見積もられる。

- $^{208}\text{Tl}$

$^{208}\text{Tl}$  は内部起因と外部起因のものが存在する。Th 系列は、2001 年に KamLAND が建設

先発信号	$E_{\text{prompt}} \geq 1.0\text{MeV}$
遅延信号	$0.3 \leq E_{\text{delayed}} \leq 1.0\text{MeV}$
時間相関	$0.4 \leq \Delta T \leq 1.0\mu\text{sec}$
空間相関	$\Delta R \leq 1\text{m}$

表 3.5:  $^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$  同時遅延計測のイベントセレクション

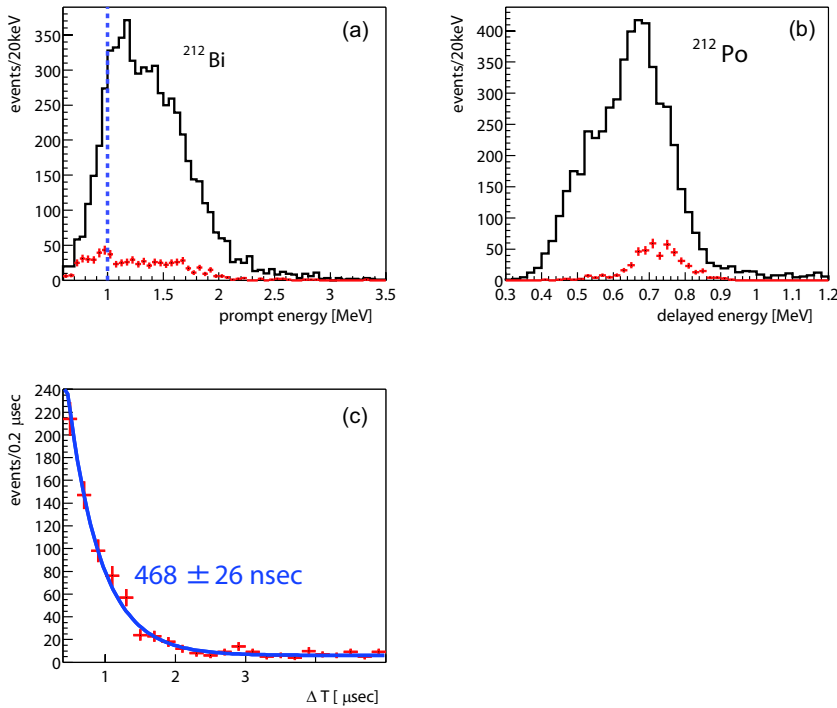


図 3.17:  $^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$  の遅延同時計測

され 5 年が経った現在では  $^{232}\text{Th}$  の放射平衡となっており、内部起因の  $^{208}\text{Tl}$  は、前述の  $^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$  のコインシデンス反応よりその量を見積もることができる。 $^8\text{B}$  ニュートリノを観測するためには 2-5[MeV] に存在する  $^{208}\text{Tl}$  のバックグラウンドを削減する必要があり、现阶段ではおよそ 3 桁程度の削減が望まれる。外部起因の  $^{208}\text{Tl}$  は KamLAND 検出器外部を覆う岩盤に含まれるものであり、2MeV-3MeV 付近のエネルギーポジションの図 3.9 からバルーン付近に  $^{208}\text{Tl}$  からの  $\gamma$  線によるイベントが集中していることがわかる。そのため有効体積を縮小することで大幅に削減することが可能であり、2-3MeV の場合、図 3.15 より半径 4m の有効体積では、およそ  $\frac{1}{1000}$  まで削減できる。



## 原子核破碎反応

太陽ニュートリノ観測に当たり障害となりうる低エネルギー領域に大きなバックグラウンドを形成する原子核破碎反応についてまとめる。原子核破碎反応によるバックグラウンドは、宇宙線ミュオンが通過した際に液体シンチレーター中の原子核が破壊され、様々な不安定核が生成されることにより形成される。

宇宙線ミュオンにより大気中で生成される $^{14}\text{C}$ は、液体シンチレーターの構成成分の大半が炭素であることから存在すると思われ、BOREXINOの観測において $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = (1.85 \pm 0.13) \times 10^{-18}$ の存在量が確認されている。 $^{14}\text{C}$ は半減期5730年で $\beta$ 崩壊0.156MeVを起こし、ppニュートリノとほぼ同じ0.3MeV以下の領域にバックグラウンドを形成するが、観測値、参照値共に不十分であることと、エネルギー閾値以下であることより表3.6では除外した。表3.6では $^{14}\text{C}$ 以外の低エネルギー領域でバックグラウンドを形成する $^7\text{Be}$ 、 $^{10}\text{C}$ 、 $^{11}\text{C}$ についてまとめた。

液体シンチレーター中の宇宙線による原子核破碎反応で生成された不安定核によるバックグラウンドの削減は、不安定核が崩壊するまでの十分な時間、新たな不安定核が作られないよう液体シンチレーターを宇宙線の影響が少ない大深度地下に置くことである。KamLANDでの原子核破碎反応による不安定核は液体シンチレーターを投入した時期と不安定核の寿命から、宇宙線ミュオンによる不安定核の生成はほぼ平衡状態となっている。現在KamLANDでは、特に $^7\text{Be}$ とCNOサイクルのニュートリノ観測に当たって障害となる $^{11}\text{C}$ のイベントを除去する方法が研究されている[12]。 $^{11}\text{C}$ の原子核破碎反応においてはニュートロンが生成されるため、このニュートロンを捕らえることにより同定除去する。現在のKamLANDの電子学ではミュオン通過後に生成されるニュートロンにより、ATWDは不感時間をもっているためその時のイベントを観測することはできないが、不感時間を持たない電子学を導入することにより実現を目指している。新しい電子学の導入により $^{11}\text{C}$ の反応によるバックグラウンドのうち95%の除去が可能になる予定である。図3.18は、現在の $^{11}\text{C}$ によるバックグラウンドが形成されているエネルギー領域での電子学改良前と改良後のエネルギースペクトルである。

アイソトープ	寿命	Q 値	観測値 (event/day/kton)	Hanger et al. [15] (event/day/kton)
$^7\text{Be}$	76.9 day	0.478MeV(EC, $\gamma$ 10.5%)	-	231
$^{11}\text{C}$	29.4 min	1.98 MeV( $\beta^+$ )	$818 \pm 59$	1039
$^{10}\text{C}$	27.8 sec	3.65 MeV( $\beta^+$ )	$16.6 \pm 1.4$	139

表 3.6: 低エネルギー領域でバックグラウンドを形成する原子核破碎反応

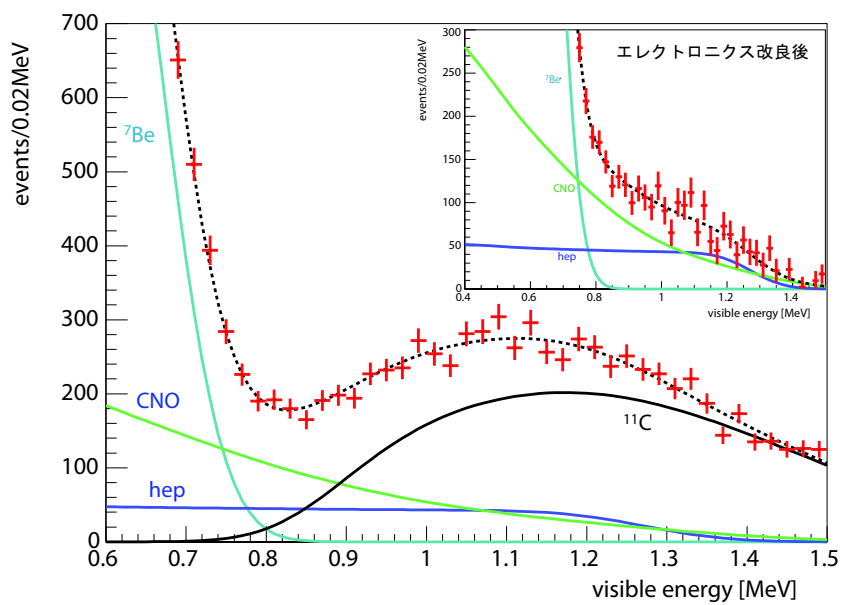


図 3.18: CNO ニュートリノと pep ニュートリノのスペクトルとバックグラウンドを形成する  $^{11}\text{C}$  のスペクトル：右上の図はエレクトロニクスの改良により原子核破碎後のミュオンを捉え同定除去をした場合の想定図

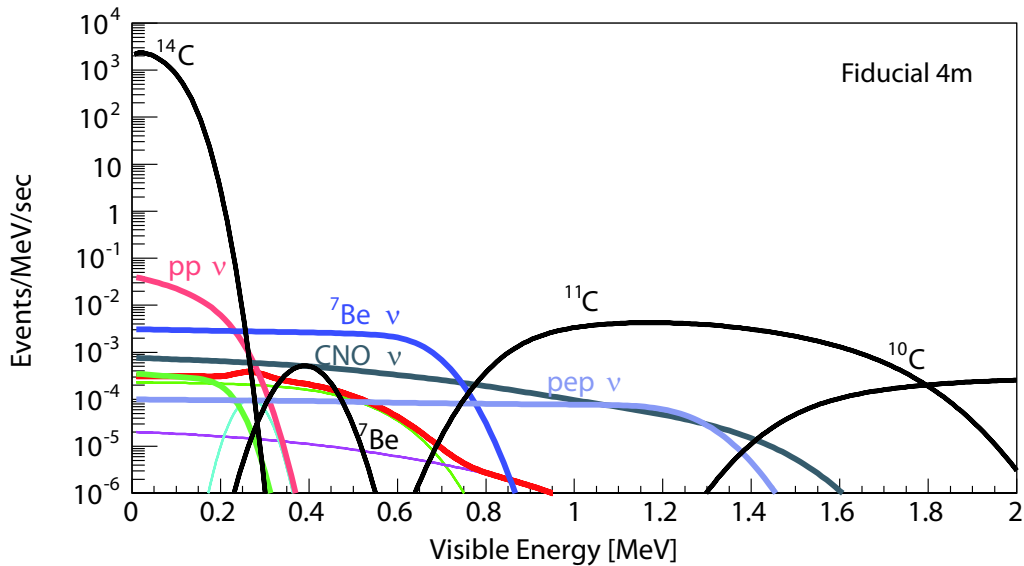


図 3.19: 純化目標値達成後の KamLAND の低エネルギー領域でのスペクトル

### 3.3.6 将来のバックグラウンドアクティビティ - 純化での削減目標

前節で求めたバックグラウンドの中で、太陽ニュートリノ観測において障害となるバックグラウンドをの現在地と将来の目標削減値をまとめる。現在の KamLAND の低エネルギー領域でのスペクトルは図に示した。この図より現在の  ${}^7\text{Be}$  のシグナルは  ${}^{85}\text{Kr}$ 、 ${}^{210}\text{Bi}$  に覆われてしまっていることがわかる。500-800[keV] の領域において、 ${}^7\text{Be}$  のシグナルの 5 桁上まで覆っている放射性不純物をおよそ  $S/N \geq 2$  程度まで改善することを目標としており、その為に必要な削減目標を表 3.7 に示す。 ${}^{210}\text{Bi}$ 、 ${}^{85}\text{Kr}$ 、 ${}^{40}\text{K}$  が全てが削減目標値を達成した場合の KamLAND の低エネルギー領域でのスペクトルを図 3.19 に示す。500-800[keV] の領域での  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノ計数率と削減の対象である放射性不純物 ( ${}^{210}\text{Bi}$ 、 ${}^{85}\text{Kr}$ 、 ${}^{40}\text{K}$ ) の計数率との比は  $S/N = 2$  程度となる。またこの領域での  ${}^7\text{Be}$  ニュートリノの単一事象係数は 34.5[event/day/fiducial] となる。

	方法	現在の KamLAND での値	純化目標値
${}^{238}\text{U} \rightarrow {}^{226}\text{Ra}$	${}^{234}\text{Pa}$ シングルススペクトル	$\leq 10^{-15}[\text{g/g}]$	$\sim 10^{-18}[\text{g/g}]$
${}^{226}\text{Ra} \rightarrow {}^{210}\text{Pb}$	${}^{214}\text{Bi}$ - ${}^{214}\text{Po}$ コインシデンス	$(3.4 \pm 0.4) \times 10^{-18}[\text{g/g}]$	OK
${}^{210}\text{Pb} \rightarrow {}^{206}\text{Po}$	${}^{210}\text{Po}$ シングルススペクトル	$1.5 \times 10^{-20}[\text{g/g}]$	$\sim 10^{-25}[\text{g/g}]$
${}^{232}\text{Th} \rightarrow {}^{208}\text{Pb}$	${}^{212}\text{Bi}$ - ${}^{212}\text{Po}$ コインシデンス	$(5.7 \pm 0.8) \times 10^{-17}[\text{g/g}]$	$\sim 10^{-21}[\text{g/g}]$
${}^{85}\text{Kr}$	${}^{85}\text{Kr}$ シングルススペクトル	$456 \pm 96[\text{mBq/m}^3]$	$1 [\mu\text{Bq/m}^3]$
${}^{40}\text{K}$	${}^{40}\text{K}$ シングルススペクトル	$2.7 \times 10^{-16}[\text{g/g}]$	$\leq 10^{-18}[\text{g/g}]$

表 3.7: 現在の KamLAND でのバックグラウンドの値と純化目標値

## 第4章 蒸留による鉛除去法の開発

前章において、KamLANDにおけるバックグラウンドの現状を述べた。本章では本研究のテーマである、蒸留という化学的手法を用いて KamLAND の液体シンチレーターから  $^{210}\text{Pb}$  の除去する方法の開発を行う。 $^{210}\text{Pb}$  は太陽ニュートリノ観測の際に 1MeV 以下の領域にバックグラウンドを形成する  $^{210}\text{Bi}$ 、 $^{210}\text{Po}$  の親核にあたる。

### 4.1 蒸留法

KamLAND の液体シンチレーターは、2000~2001 年の建設時に液液抽出法による純化を行い KamLAND に入れられている。現在の反電子ニュートリノ観測においては問題とならないバックグラウンドレベルを達成しているが、太陽ニュートリノ観測においては不十分である。ここではまず始めに KamLAND にて建設時の純化の際行われた液液抽出法とについてまとめ、本実験のテーマである蒸留法との比較を行い、本実験の意義を述べる。またそれと合わせ蒸留で想定される問題点とその解決方法についてまとめる。

#### 4.1.1 液液抽出と蒸留法

現在の KamLAND では、液液抽出法により、液体シンチレーターの純化が行われた状態となっている。液液抽出法は中性の液体シンチレーターに混入しているイオン性の放射性物質を、水分子の極性を利用してオイル層から水層に移す手法により除去を行う。常温常圧で安全に、また液体シンチレーターを劣化させる可能性が低い点が利点である。しかし除去できるものは極性をもつイオン分子に限られるため、その除去率は液体シンチレーター中での物質の状態に大きく左右される。液液抽出前の測定データを用いて純化前後での除去効果を見積もる。ICPMAS の測定により、液体シンチレーターの U、Th、 $^{40}\text{K}$  濃度を調べた表 3.1 から PPO の  $^{40}\text{K}$  を用いて KamLAND で測定された純化後の  $^{40}\text{K}$  の量を比較すると、

$$1.2 \times 10^{-13}[\text{g/g}] \rightarrow 2.7 \times 10^{-16}[\text{g/g}] \quad (4.1)$$

となっており液液抽出法により効果的に除去できている。しかし液液抽出法の U、Th に対する効果は、表 3.1 において測定限界となっているため見積もることはできないが、Th 系列の  $^{212}\text{Pb}$  を用いた小規模装置での液液抽出法の除去率は 20%となっており [16]、鉛の除去に対しては液液抽出法はあまり効果的ではなかったと思われる。次期太陽ニュートリノ観測において 6 桁という高い除去率を達成するためには、さらに除去効率の高い方法で純化を行う必要がある。そのため、本実験では蒸留法によりその可能性を検証する。

#### 4.1.2 蒸留で想定される問題点

表 4.1 に液液抽出法と蒸留法の比較を行った。蒸留法では液液抽出法には除去できない物質の除去が可能であるため、液液抽出法よりも高い除去効率が期待できる。しかし液液抽出法にはない問題点を持っており、その解決もまた重要である。ここでは問題点について述べる。

	液液抽出	蒸留法
除去方法	水分子の極性を利用して オイル層から水層に移す	蒸気圧の差を用いての分離精製
除去可能物質	イオン性の粒子 <sup>40</sup> K に対して効果的	蒸気圧の差によるため形態は問わない ただし蒸気圧が近いものは除去不可能
除去中の問題	常温常圧で安全	可燃性液体の加熱を行うため 防火、防爆対策が必要
除去後の影響	液体シンチレーターの 組成は維持するが、混入した 水分、酸素を除去する必要がある	不純物の生成 液体シンチレーターの変質 蒸留後の液体の組成の変化

表 4.1: 液液抽出法と蒸留法の比較

#### 不純物の生成

液体シンチレーターの性質を表 4.2 としてまとめた。これから、ノルマルパラフィン、プソイドクメンは熱に対して分解する恐れがあることがわかる。また高温での蒸留操作はプソイドクメンの引火点の低さから避けるべきである。実際に液体シンチレーターを溶存酸素濃度 (60ppm 程度) が高い状態で加熱を行うと、不純物を生成し黄変する。それを示したのが図 4.1 である。図 4.1 より A、B の領域に加熱前後で不純物が生成されていることがわかる。しかし、この不純物は溶存酸素濃度を下げることにより生じなくなるため、減圧した状態で行うことが望ましく、また減圧することにより蒸留温度も指数関数的に下がる (図 4.8)。加熱により不純物が生成された場合の液体シンチレーターの性能への影響は 6 章で述べることとする。

物質	融点	沸点	引火点	発火点	性質
ドデカン (ノルマルパラフィン)	-9.6	214.5	76 (代表値)	-	熱分解、酸化分解反応の際に CO <sup>2</sup> 有機化合物を含む固体浮遊物の生成
1,2,4-トリメチルベンゼン (プソイドクメン)	-44	169	44	500	燃焼すると分解 酸化剤と激しく反応し 火災や爆発の危険
2,5-ジフェニルオキサゾール PPO	69~74	360	-	-	-

表 4.2: 液体シンチレーター構成成分の温度に関する注意点

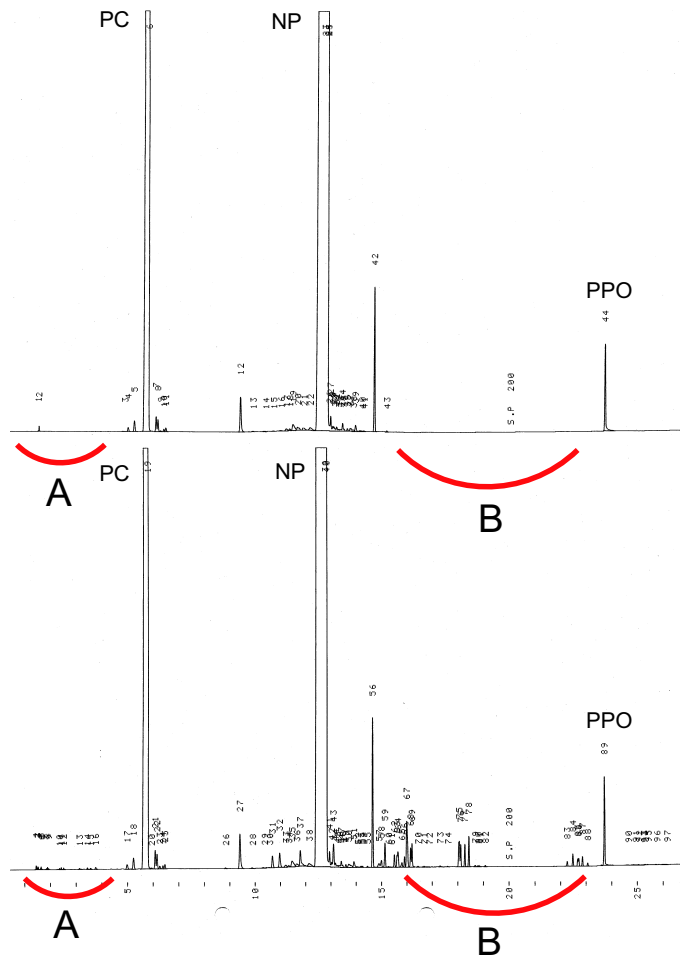


図 4.1: 上の図は加熱前の液体シンチレーターで、下の図は溶存酸素濃度が高い状態での加熱した液体シンチレーターの成分をガスクロマトグラフィーで測定した結果：横軸は時間、縦方向は成分の量を表す

#### 蒸留後の溶液の組成の変化

詳しくは次節の蒸留原理で述べるが、蒸留は沸点温度により構成成分を分離精製する。この性質こそが、沸点の違う放射性鉛化合物を液体シンチレーターから取り除くことを可能にしている。しかし混合物を蒸留する際には、その性質により蒸留後の溶液の構成比は蒸留前とは異なる構成比を持つ。また装置の分離性能により成分の構成比は異なるため、再度混合する場合には構成物を正確に測定できる装置が必要である。そのため密度計やガスクロマトグラフィーといった成分の構成比を測定する装置の特性を調べ、較正しておくことが必要である。

## 4.2 実験原理

まず初めに実験原理について述べる。KamLANDで太陽ニュートリノ観測を行う際、ウラン系列の $^{210}\text{Pb}$ (図4.2)が大きなバックグラウンドを形成する。しかし、 $^{210}\text{Pb}$ は半減期が22.3年と非常に長く、また $^{210}\text{Po}$ の半減期が138.4日と長いため、蒸留による除去効果を遅延同時計測を用いて測定するには適さない。そのため他の反応を用いて測定する。考えられる候補としては、同じウラン系列の $^{214}\text{Pb}$ (図4.3)があるが、これは半減期が26.8分と短く、蒸留という化学操作を行うには時間が短すぎ、操作中に線源の強度が落ちていしまい、正確な測定ができない。そのため違う系列ではあるが、トリウム系列の半減期10.64時間の $^{212}\text{Pb}$ (図4.4)を蒸留実験では用いた。ウラン系列の $^{210}\text{Pb}$ もトリウム系列の $^{212}\text{Pb}$ もPoから $\alpha$ 崩壊された状態であり、化学的状態もよく似ていると推測される。 $\alpha$ から崩壊したPbの状態は次の4.1.1「液体シンチレーター中での鉛の形態」で述べる。

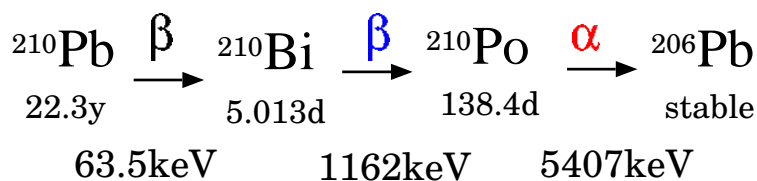


図 4.2: U 系列  $^{210}\text{Pb}$  の崩壊過程

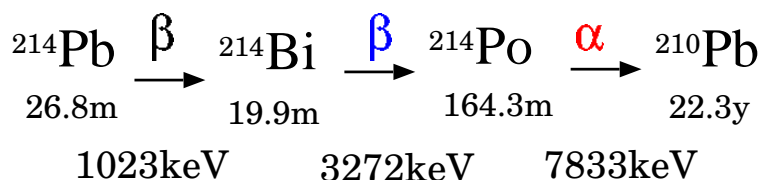


図 4.3: U 系列  $^{214}\text{Pb}$  の崩壊過程

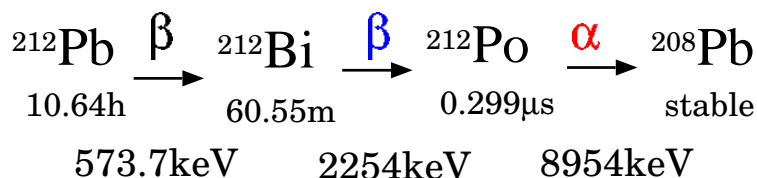


図 4.4: Th 系列  $^{212}\text{Pb}$  の崩壊過程

#### 4.2.1 液体シンチレーター中での鉛の形態

液体シンチレーター中でのPbの形態を知ることは、効率よくPbを除去する上でも重要である。PbはU系列、Th系列共に、Poから $\alpha$ 崩壊したものである。初めに崩壊後のPbの存在形態を考える。 $\alpha$ 崩壊後のPbの鉛の状態は次のように予想される(図4.5)。

- 1 反跳直後のPbのイオン価はあらゆる電荷で存在する( $\text{Pb}^{+n}$  ( $n = 5 \sim 9$ ))
- 2 周囲の分子をイオン化しながら、運動エネルギーを消失
- 3 運動エネルギーが熱エネルギーに近くなるまで衝突(衝突回数は4~6回)
- 4 衝突では、有機物の結合鎖を切るのに十分なエネルギーを持っているが、その反応は統計的

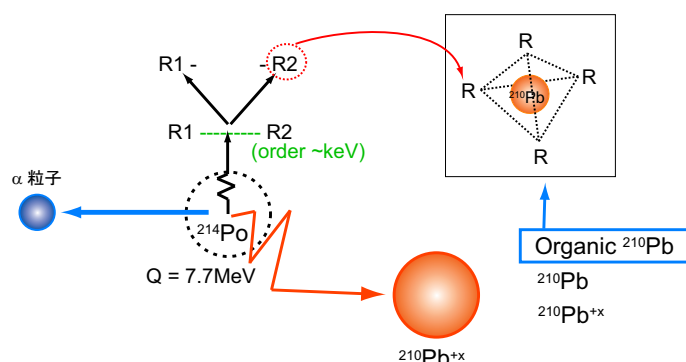


図 4.5:  $\alpha$ 崩壊後の鉛の形態

金属、イオンの状態で存在している鉛は、通常沸点が高く(金属鉛においては $1750^\circ\text{C}$ )、蒸留による液体シンチレーターからの分離が比較的容易であると予想される。しかし、鉛が有機錯体や有機金属の形態で存在している場合、その沸点は未知な部分が多く、もし液体シンチレーターの物質の沸点帯に入っている場合は分離が非常に困難である。有機鉛化合物の存在についてはアルキル鉛として存在する可能性が考えられる。そしてその量は $\alpha$ 崩壊による有機物の生成が統計的であることから、 $\alpha$ 崩壊をする鉛の量に対して一定の割合で存在すると考えられる。有機鉛化合物については付録Cにまとめることとし、ここでは生成される可能性がある有機鉛化合物について表4.3にその化学式と沸点、性質を示した[19][20]。しかしその量が削減目標値より少ない量( $\leq 10^{-26}[\text{g/g}]$ )であるか、蒸留される温度において、その形状が崩壊する性質を持つならば、液体シンチレーター中の鉛の形態はよりシンプルに、金属鉛かイオン鉛がメインであるといえるかもしれない。

#### 4.3 蒸留原理

この節では本実験の手法である蒸留操作について述べる[17][18]。



物質名	化学式	沸点 [°C]	性質
テトラメチル鉛	Pb - (CH <sub>3</sub> ) <sub>4</sub>	110 (13hPa)	有機溶媒に可溶、水に不溶：低圧の不活性ガス化中で加熱すると分解してメチルラジカルを形成
テトラエチル鉛	Pb - (C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>4</sub>	83 (10hPa)	有機溶媒に可溶、水に不溶：室温で徐々に分解し 125~150°Cで急速に分解

表 4.3: 予想される有機鉛化合物

#### 4.3.1 蒸留の原理

蒸留とは揮発性物質を沸点まで熱して沸騰させ、揮発して出てきた目的物質の蒸気を冷やして集める物質の分離精製法であり、蒸気圧の差を利用して混合物の特定成分を濃縮してゆく操作である。通常、温度が一定になったところを捕集し、それを本留と呼ぶ。初めの蒸留成分である初留と、終わりのほうの後留は蒸気温度が一定でないため、組成が変動し、結果として副成分が多く含まれる。

熱する過程で蒸留物に変質する恐れがある場合は、減圧して蒸留を行わなければならない。

#### 減圧蒸留

図 4.1 で示したように、高い酸素濃度での加熱操作は不純物を生成し、また高温での加熱操作はプソイドクメンやノルマルパラフィンの成分が変質する恐れがある他、発火、爆発などの危険の可能性もある。このような液体シンチレーターの性質から蒸留操作においては、温度と酸素濃度の両方を十分に下げて行う必要がある。そのため蒸留操作では減圧蒸留を行うことが好ましい。物質の持つ蒸気圧まで内部の圧力を下げることにより、気相は物質の蒸気で満たされる。そのため減圧することで、沸点の高い物質に対して低温で蒸留することを可能となる。沸点の極めて高い物質や、熱によって分解・反応してしまう物質は、減圧蒸留することで加熱による分解を抑制することができる。減圧蒸留を行う前に、精製する物質の温度による蒸気圧を調べておく必要があり、それについては次節で述べる。

蒸留において共沸しない混合物であれば、ほぼ完全に分離精製することが可能であり、この操作を特に分留という。

#### 分留

混合物を加熱していくと、液面から各成分が徐々に蒸発していく。各成分の蒸気圧の和が系の圧力と一致すると沸騰が始まる。そのとき、発生する蒸気の組成はラウールの法則に従い、液面の成分組成と、その温度での各成分の蒸気圧の両方から決定される。この平衡状態での気相あるいは液相の成分比と温度の関係をプロットした図を凝縮曲線または気液相関図と呼び、蒸留の濃縮過程が予測できる。図 4.6 より、A と B の 2 つの成分の沸点が  $t_A$ 、 $t_B$  であった時、A に B が  $c\%$  だけ混ざっているものは  $t_A$  よりも低い C に相当する温度で沸騰する。さらに B が多くなると温度は下がり、B だけの時に  $t_B$  で沸騰する。 $t_B$  から蒸留された蒸気を冷却・捕集すると、通常

は温度が低い低沸点成分の B の比率が高く、温度を上げるにつれ高沸点成分の A の比率が増すような蒸留物が得られる。これを繰り返すことで、 $F \rightarrow F' \rightarrow E \dots$  と濃縮が進み目的成分の濃度を上昇させることができる。一回の蒸留操作により十分に精留されるように設計されたものが分留管(分留塔)といい、本実験での大規模蒸留装置はこれに当たる。蒸留塔は蒸発 - 凝縮の平衡状態が多段階で進行するように設計されており、図 4.6 で示すならば、FED に相当する部分が塔の内部で行われていることになる。そして蒸留された液の一部の  $d[\text{mol}]$  を留出し、 $r[\text{mol}]$  を還流させることで塔の上部で蒸気と液体が完全に接触し、そこから発生する蒸気の組成が液の組成と平衡状態になる。この留出と還流の比  $r/d$  を還流比と呼び、蒸留の効率を調べる上での重要なパラメータとなる。またこのような平衡状態にある段を理論段と呼ぶ。実験で用いた大規模蒸留装置では、塔の内部に蒸留効率を上げるための充填物が入れられており、この充填物の個数が段数にあたる。図 4.7 に実際に使用している蒸留塔の充填物を示した。

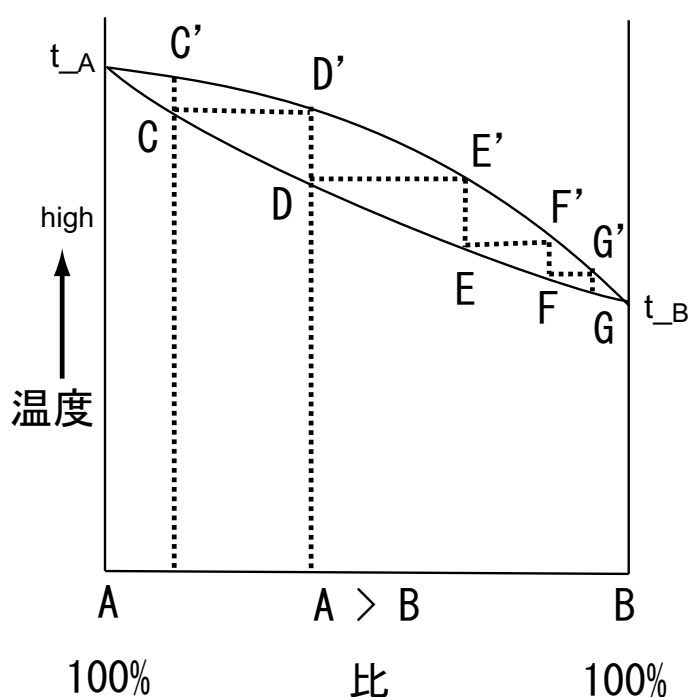


図 4.6: 凝縮曲線

#### 4.3.2 減圧下での物質の沸点

蒸気圧を表す理論的な式としてはクラウジウス-クラペイロンの式がある。しかし、この式にはいくつかの仮定があるため実測値との一致はよくない。そのためパラメータが少なく、比較的広い範囲の蒸気圧を良く表せる Antonie の式を用いた。Antonie の式は圧力と温度の関係式で、式 4.2 と書ける [18]。これを用いて、ノルマルパラフィンとプソイドクメンの蒸気圧温度を求める。

$$\log_{10} P = A - \frac{B}{T + C} \quad (4.2)$$

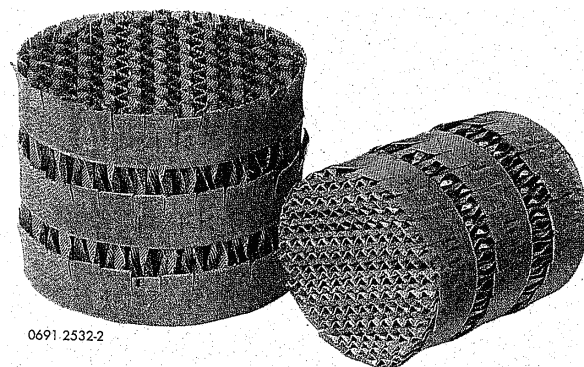


図 4.7: 大規模蒸留装置で使用している充填物

A、B、C は物質の蒸気圧と温度の単位に依存する定数であり Antonie 定数といい、ドデカンとプソイドクメンの Antonie 定数は表 4.4 に示した。P は平衡状態における飽和蒸気圧で単位は [mmHg]、T は平衡状態における温度を表し単位は [°C] を用いる。プソイドクメンと、ノルマルパラフィンの構成要素であるドデカンの各係数を表 4.4 に示した。この係数を用いて、プソイドクメンとドデカンの蒸気圧を求めたものが、図 4.8 である。

	A	B	C
Pseudocumen	7.044	1573.27	208.56
Dodecane	6.980	1625.93	180.32

表 4.4: Antonie Equation の係数

## 4.4 装置

### 4.4.1 蒸留装置

蒸留装置について説明する。蒸留装置は図 4.9 ような構成をしている。小規模装置については表 4.5 にまとめた。蒸留装置は大きく分けて、リボイラー、蒸留塔カラム、収集フラスコがあり、溶液はまず始めにリボイラーに張られ加熱される。蒸留塔カラムはで気液平衡を保ちながら蒸気圧による濃縮が行われる。小規模ガラス蒸留装置においては塔頂部分に達すると枝管により一部の液は収集フラスコへと集められる。この際蒸留効率に大きく作用するのはカラムの部分で、図 4.9 の左図のような真空断熱の部分をもつ直管となっている。また内部には蒸留効果を上げるための充填物に相当するスチールウールが詰めてある。大規模ガラス蒸留装置においては図 4.9 の右図のような真空断熱の部分をもつ直管が 3 つ組み合わせられており、中の充填物の数は調整できる。また還流という操作を行えるよう、液の取り出し口はバルブで自由に開閉でき、また取り出し量も流量計を調整することでコントロール可能である。本実験では大規模ガラス蒸留装置の一部しか使っていない。この装置の詳細については 4.6.6 「大規模ガラス蒸留装置」にて述べる。

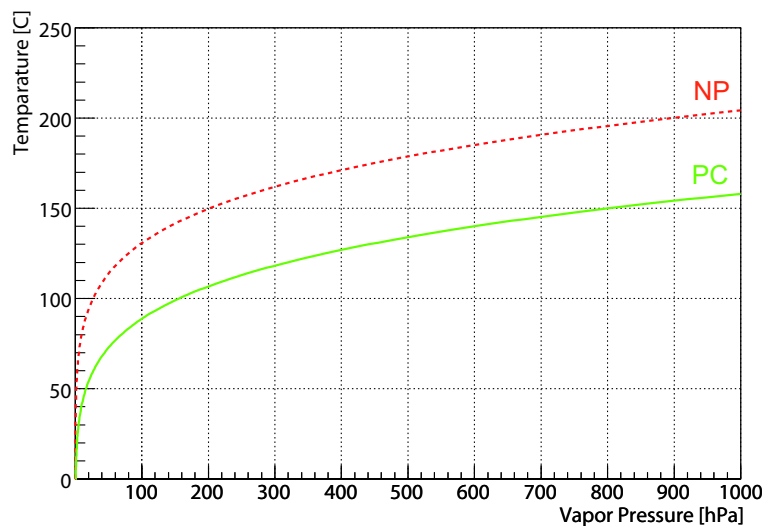


図 4.8: Antoine Equation : 実線はプソイドクメンの蒸気圧曲線、破線はノルマルパラフィンの主成分であるドデカンの蒸気圧曲線をプロットしたものである

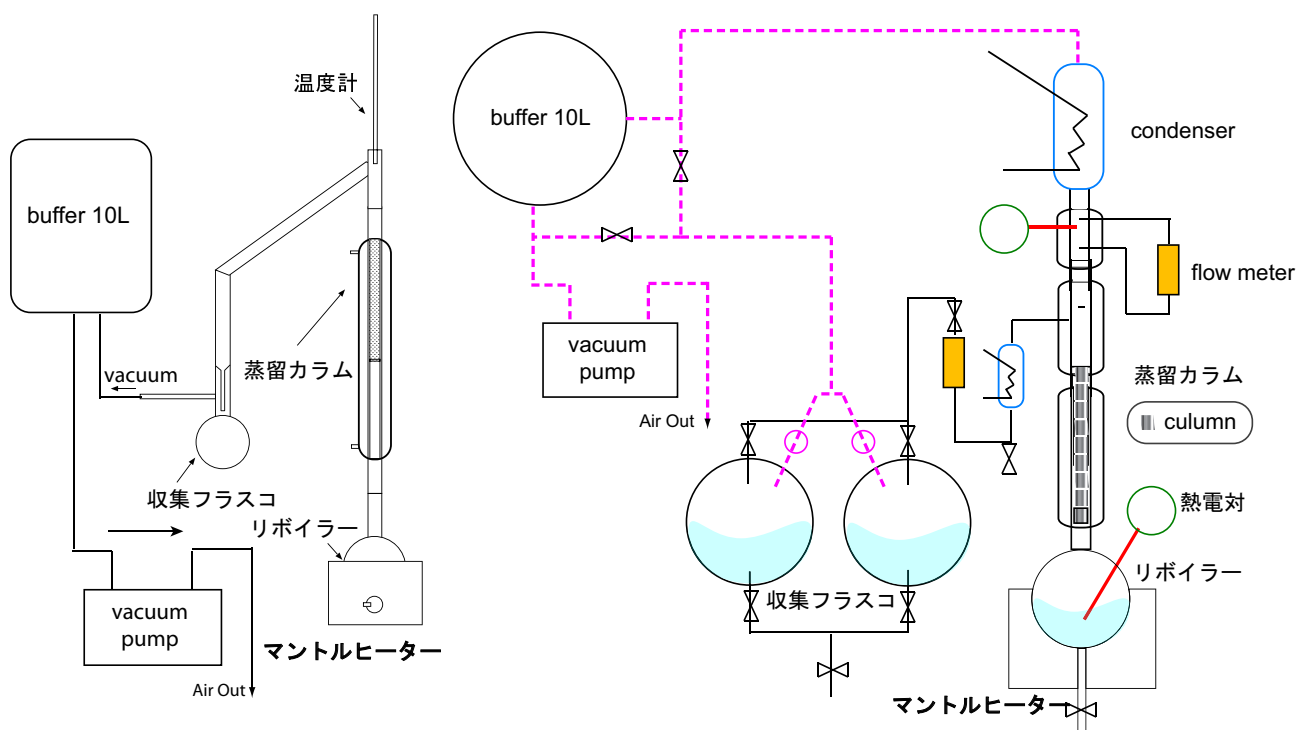


図 4.9: 蒸留装置 : 左図は小規模ガラス蒸留装置、右図は大規模ガラス蒸留装置の 1 塔目の略図

#### 4.4.2 バブリング装置

本実験では 3 種類のバブリング装置を用いた。各装置詳細は付録 B にまとめ、ここではバブリング装置の構成と、各バブリング装置のバブリングにより得られるアクティビティについて記す。

マントルヒーター	AS ONE 200ml 丸底フラスコ用
オイルヒーター	シリコンオイルを使用 ( $\leq 180$ 度)
真空ポンプ	SIBATA 500
蒸留装置ガラス部品	SIBATA SPC コネクションガラス製品
真空断熱カラム	東北大学ガラス工場作成 真空断熱カラム

表 4.5: 小規模ガラス蒸留装置

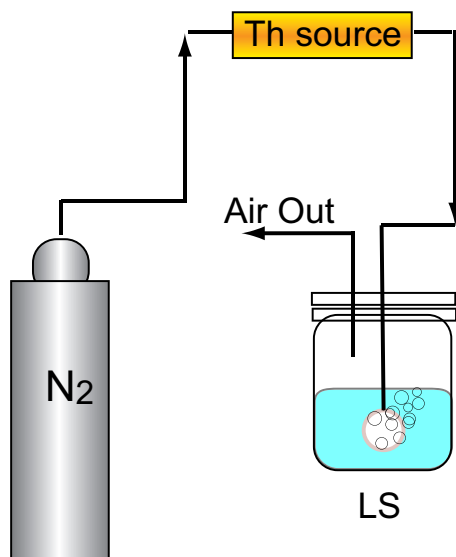


図 4.10: バブリング装置の構成

装置	バブリング時間 [h]	アクティビティ [Bq/50ml]
アラバマ大学提供のバブリング装置	~10	~100
東北大学 $\alpha$ 放射体実験室	5~12	0.5~10
PPO バブリング装置 (東北大学)	1	10

表 4.6: バブリング装置ごとのアクティビティ

### 4.4.3 成分分析装置

#### 密度計

密度計 (図 4.11 左図) は密度を測定することにより、その構成比を調べることができ、本実験では PC と NP の蒸留の際、変化した構成比を補正するために密度計を用いた。装置の較正は PC と NP の構成比を変化させた溶液を測定した。それを示したのが図 4.11 の左図である。またこの装置で PPO の量を変化させて PPO の較正を行ったのが図 4.12 である。この図から、PPO の量と密度の比例関係が見えるもののその精度はよくない。

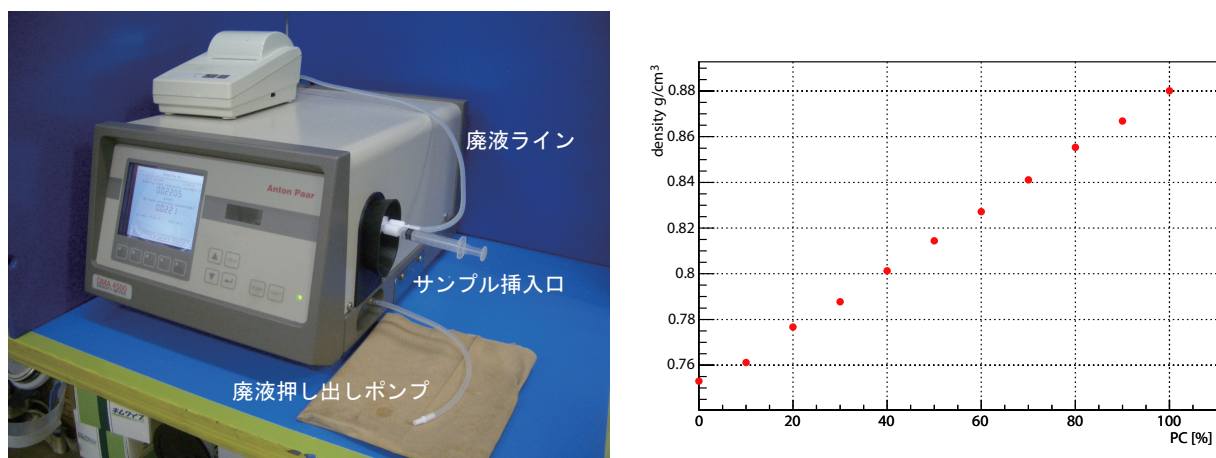


図 4.11: 密度計と較正曲線

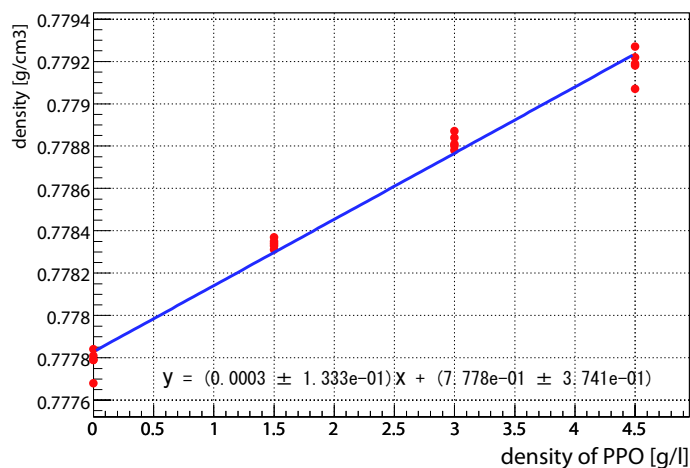


図 4.12: 密度計での PPO の測定精度

## ガスクロマトグラフィー

ガスクロマトグラフィーは密度計に比べ少量の物質まで精度良く測定できる利点がある。しかし1回の測定に40分程度かかるため、蒸留後の低放射線強度の試料作成においては、測定中に放射線強度が落ち、除去率が正確に測定できなくなる恐れがあるので注意をしなければならない。PPOを含まない場合は密度計のほうが、短時間でその比を測定することができるため適しているといえる。本実験で使用したガスクロマトグラフィーはKamLANDでの液体シンチレーターの全成分を測定することができる(図6.1)。この装置のPPO量の較正を行った。図4.14が示すようにガスクロマトグラフィーによりPPOの量の測定が可能であり、蒸留後のPPOの見積もりや蒸留前後での成分の変化について調べることが可能である。

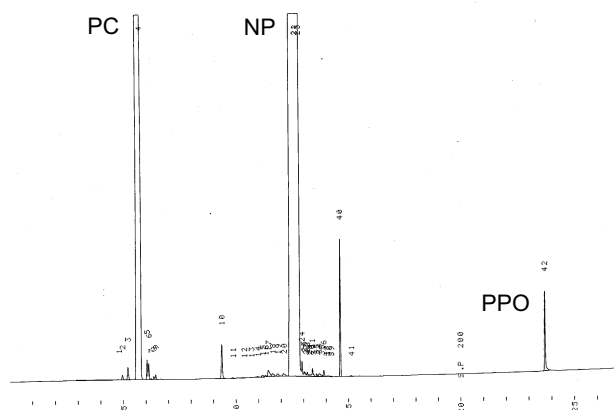


図 4.13: ガスクロマトグラフィーで液体シンチレーターを測定した成分結果：縦軸は成分の検出量、横軸は成分が検出されるまでの時間

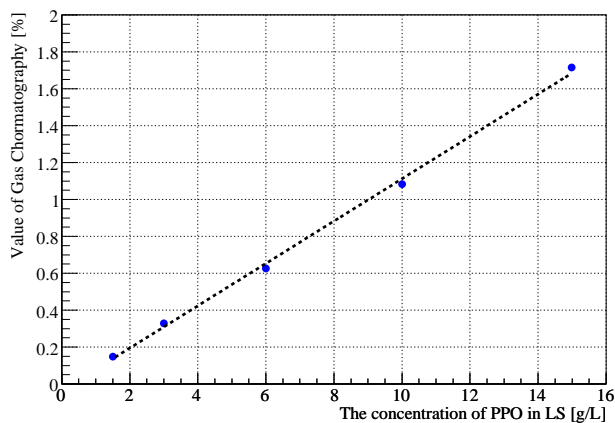


図 4.14: ガスクロマトグラフィーでの PPO の測定精度

## 4.5 測定方法

蒸留による  $^{212}\text{Pb}$  削減効果の測定は Th 系列の  $^{212}\text{Bi}$ - $^{212}\text{Po}$  のコインシデンス反応を使う。遅延同時計測の測定系は図 4.15 に示した。 $^{212}\text{Pb}$  は  $\beta$  崩壊をして  $^{212}\text{Bi}$  となり、 $^{212}\text{Bi}$  は半減期 300ms で  $\alpha$  崩壊を起こして  $^{212}\text{Po}$  となる。この二つの信号を計測することで、バックグラウンドを大幅に減らすことができる。遅延同時計測により、得られた先発信号は図 4.16 の左図、後発信号は図 promptdelayed の右図である。またその時間相関は図 4.17 に示した。イベントセレクションは表 4.7 に示した。 $^{212}\text{Pb}$  の量は、 $^{212}\text{Pb}$  以下の崩壊が非常に短い時間で起こるため、 $^{212}\text{Po}$  の  $\alpha$  の計数から蒸留前後の  $^{212}\text{Pb}$  の量を見積もる。この  $\alpha$  の計数は半減期 10.64 時間で減少するため、測定値を  $^{212}\text{Pb}$  の崩壊曲線でフィットする (図 4.18)。これにより各サンプルの測定開始時間のずれを補正することができ、より正確な蒸留前後での除去率を得ることができる。

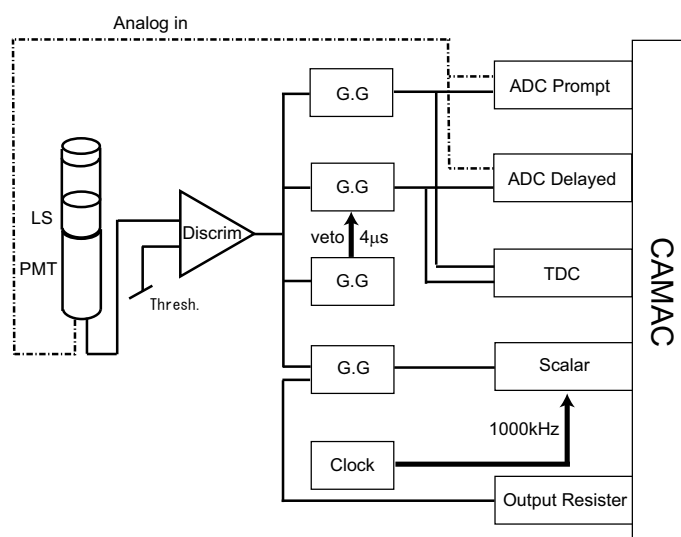


図 4.15: 遅延同時計測

先発信号	-
後発信号	$E_{\text{delayed}} \geq 130\text{ch}$ ( $\geq 65\text{keV}$ )
時間相関	$250\text{ch} \leq \Delta T \leq 2000\text{ch}$ ( $1\text{ch}=1.29\text{ns}$ )

表 4.7: イベントセレクション



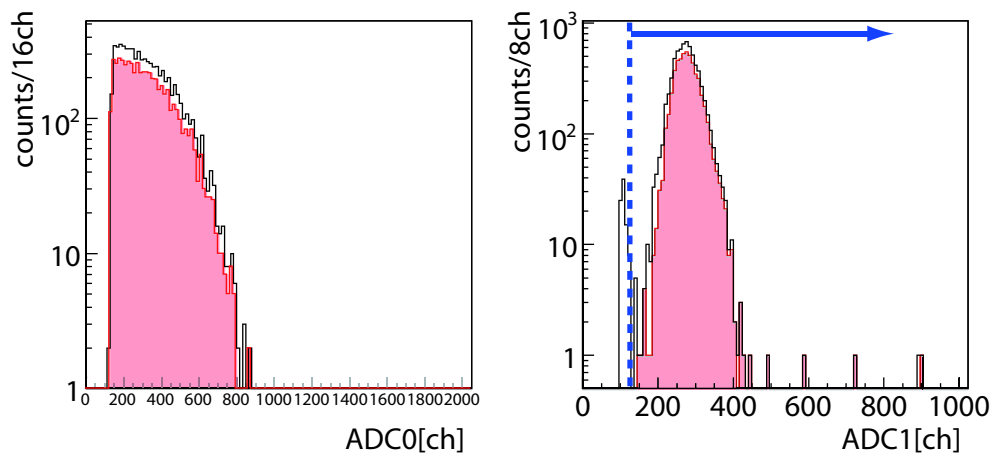


図 4.16: 左図は先発信号、右図は遅延信号：黒線はイベントセレクション前、ピンク色の領域はイベントセレクション後

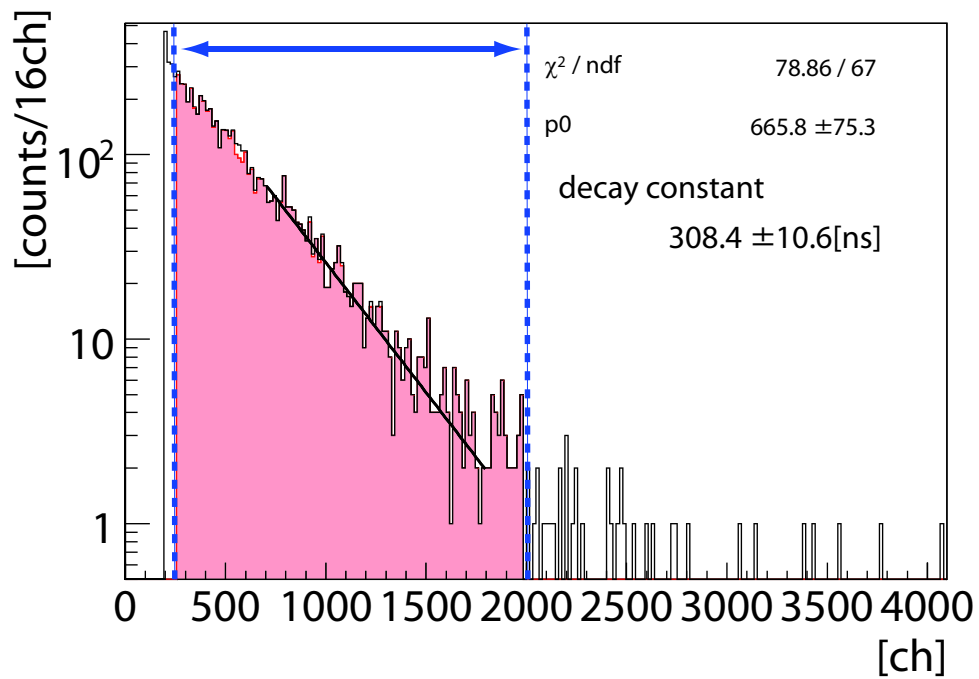


図 4.17: 先発信号と遅延信号の時間差: $\tau=300\text{ms}$

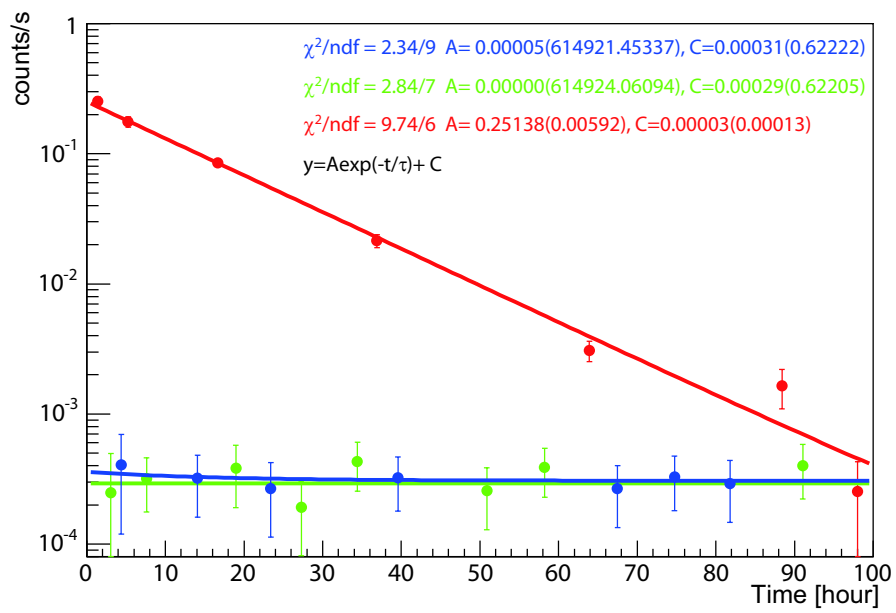


図 4.18:  $^{212}\text{Po}$  からのカウントレートを  $^{212}\text{Pb}$  の崩壊曲線でフィットした図

## 4.6 蒸留による鉛除去

蒸留操作は液体シンチレーターの各成分ごとによる純物質での蒸留実験と、その組み合わせによる混合物による蒸留実験に大別できる。この節では純物質での単純蒸留、純物質での複数回蒸留、混合物での単純蒸留について、4.2節で述べた蒸留原理に基づいて行った蒸留操作とその結果についてまとめる。またその時の蒸留パラメーターも記す。

### 4.6.1 純物質の単純蒸留による鉛除去

#### 蒸留方法

単純蒸留の操作方法は蒸留物によらず同じであり、またこの後述べる複数回蒸留、混合物での蒸留における基礎となるものである。また蒸留装置は2種類使用したが蒸留の手順の大筋は変わらない。ここでは蒸留操作の手順を書く。実験での圧力、温度などのパラメーターは表 4.8 にまとめた。

- 1 リボイラー部に液を張り込む。液の量は張り込むフラスコの量に対して 90%を超えると安定した蒸留が望めない。また液の量が 10%(大規模装置では 30%)を下回った状態では蒸留は行われぬ。これは蒸留塔のカラムの長さによりほぼ決まり、蒸留のときに蒸留カラム内部を満たす蒸気量が必要であることを意味する。
- 2 液の張り込み後、真空が安定してから蒸留操作を開始する。真空が安定していない状態では、真空ポンプにより内部の気相が激しく入れ替わるため安定した蒸留に必要な気液平衡が保てないため、リーク箇所を減らし真空が安定に保てるようにしてから蒸留を開始する。
- 3 本来蒸留操作を行う際は突沸を防ぐために沸騰石などを用いるが、この実験では KamLAND で現在使用されている液体シンチレーターの蒸留が最終目的であり、実機に反映する際、不純物を混入させるおそれがあるため一切用いず行った。その為温度を急激に上昇させると突沸が起きやすくなる。
- 4 カラム内部で気液平衡の状態を保ち蒸留操作を行う。大規模装置を使用の際は、蒸留液の取り出しを任意に決められるため安定した状態から液の取出しが可能となるが、小規模装置の場合は塔頂に達した時点で蒸留が始まる。
- 5 本実験では測定量を採集した時点で蒸留操作を終了した。装置の過加熱による空焚きはガラス容器を破損する恐れがあるので注意する。

試料	使用した蒸留装置	気圧 [hPa]	蒸留温度
NP	小規模蒸留装置	300	160
PC	大規模蒸留装置	37	75
PPO	小規模蒸留装置	20	214

表 4.8: 実験条件

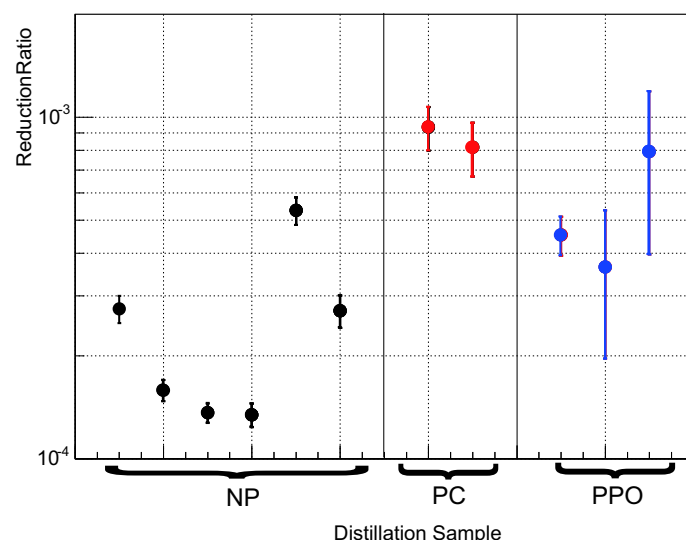


図 4.19: 純物質での 1 回の蒸留操作での鉛の除去効果

## 結果

図 4.19 より LS の各成分であるノルマルパラフィン (NP)、プソイドクメン (PC)、PPO に対する 1 回の蒸留における除去率は、 $\sim 10^{-4}$  を達成した。

1 回蒸留の結果は削減目標値には及ばないものの、 $\sim 10^{-4}$  という除去率は蒸留操作が放射性鉛化合物の除去に非常に効果的であることを示している。次節ではこの結果を踏まえ繰り返しによる除去率を調べる。

### 4.6.2 純物質の複数回蒸留による鉛除去

#### 蒸留方法

複数回蒸留の目的は蒸留の最大除去率を見積もることである。そのため除去効率を下げるあらゆる原因を排除して蒸留操作を行った。装置は小規模ガラス蒸留装置を用いた。装置を洗浄せずに続けて蒸留した時の蒸留液のアクティビティは、洗浄をした場合の約 1.3 倍になることから除去率の測定をする際には無視できないと考えた。またそれに伴い、充填物として用いたスチールウールも洗浄の対象とした。また、蒸留の原理でも述べたように、蒸留温度前後は不純物が混ざりやすい。そのためノルマルパラフィンのみを採取するよう蒸留前後の低沸点成分と高沸点成分を採取しないことにした。単純蒸留での蒸留操作方法に以下の点を加えて複数回での蒸留を行った。蒸留の条件は表 4.9

- 1 毎蒸留ごとに蒸留装置を洗浄し、付着している鉛を取り除く  
洗浄はアセトン → エタノール → 硝酸 (0.1mol/ℓ) → 蒸留水 → エタノール → アセトンの順序で行った。ガラスは鉛などの金属成分が付着しやすいので、硝酸などの酸性の溶液により取り除く。
- 2 内部の充填物もノルマルパラフィンで超音波洗浄を行い、連続使用は避ける

- 3 蒸留直後の低沸点成分（初留）は採取せず捨てる
- 4 蒸留最後の高沸点成分（後留）は採取せず捨てる

試料	使用した蒸留装置	気圧 [hPa]	蒸留温度°C
NP	小規模蒸留装置	300	160

表 4.9: 実験条件

## 結果

NP のみの複数回蒸留での目的は、最大除去率を確認することであり、その結果は  $2.9 \times 10^{-5}$  となった。この図 4.20 より、2 回目の除去率は  $\frac{1}{2}$  程度になることがわかる。また 5 から 7 回蒸留にかけてはほぼ頭打ちの傾向が見られる。この原因を考える上で、除去率と蒸留回数について考察する。

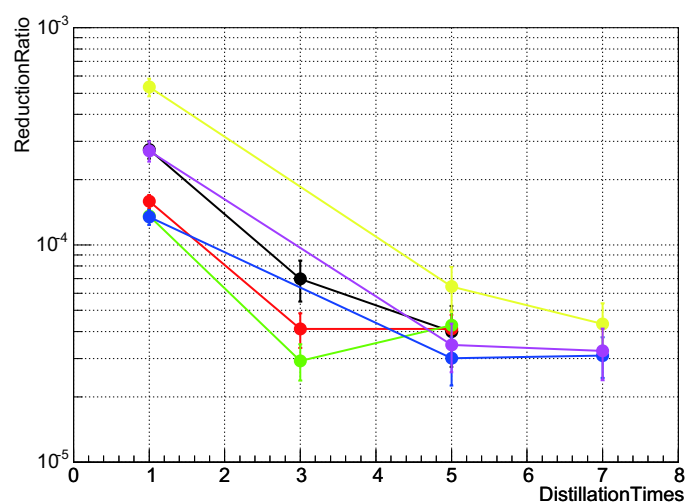


図 4.20: NP での複数回の蒸留操作での鉛の除去効果：連続して行った一連の蒸留を同じ色で示した

#### 4.6.3 除去率と蒸留回数（理論段）の関係

理論段とは蒸留塔に入れられた充填物（図 4.7）のことを意味する。充填物の個数は蒸留回数と相関があり、その個数に比例して除去率もよくなる。ここでは小規模装置の結果を大規模装置の除去率と比較して、蒸留回数を理論段に置き換え考察する。表から小規模装置の理論段を 8 段と想定した場合、小規模装置での 1 回の蒸留で除去率が  $\frac{1}{2}$  として 20 段相当の理論段での想定値と実験値を表 4.10 に示す。表 4.10 の結果によれば、20 段相当の想定除去率は、表 4.10 の下段に示した実際の 20 段での除去率と良い一致を示す。小規模装置での 1 回の蒸留操作での除去率を  $\frac{1}{2}$  とした場合の除去率の変化と、実験よりもとまった値を図 4.21 にまとめた。

この図より、実験による除去率は充填物の個数 33 段目ではほぼ頭打ちとなっていることがわかる。もし蒸留によって除去しているものが金属もしくはイオン性の放射性鉛化合物であるならば、ノルマルパラフィンとの温度差が十分にあることよりさらに蒸留回数を増やしたとしても除去できると考えられる。しかし実験結果では 40 段相当になる 5 回蒸留においても、56 段相当になる 7 回蒸留においても蒸留結果は一定となっている。このことから、 $2 \times 10^{-5}$  までは容易に除去できる金属もしくはイオン性の鉛といった高沸点の成分を除去しているのではないかと思われる。図 4.21 の橙色の領域では、1.1[液体シンチレーター中での鉛の形態]で述べた低沸点の放射性鉛化合物の存在の可能性が考えられる。放射性鉛化合物である有機鉛の生成は、生成に必要な有機物の切断が  $\alpha$  崩壊により統計的に起こるため、 $\alpha$  崩壊した鉛の数に対し、一定の割合で存在すると予想される。もし常に有機鉛が  $\sim \times 10^{-5}$  の割合で存在するならば、更なる削減のためには、ノルマルパラフィン蒸留中に、蒸留温度による除去率の変化などを調べる必要がある。しかしこれらのことは、理論段が 10 段相当の蒸留性能の良い装置であれば、本実験の除去目標である  $10^{-5}$  レベルまでは、1 回もしくは 3 回程度で到達できることを示している。現段階では  $10^{-5}$  程度を最大除去率として、混合物の蒸留について述べる。

実験条件	実験による除去率	理論段	20 段相当で予想される除去率
小規模装置 1 回蒸留	$1.5 \sim 5.3 \times 10^{-4}$	8 段相当	$2.7 \times 10^{-4} \sim 3.8 \times 10^{-5}$
大規模装置（理論段 8 段） 1 回蒸留	$\sim 3 \times 10^{-4}$	8	$1.5 \times 10^{-4} \sim 7.5 \times 10^{-5}$
-	-	-	実験による除去率
小規模装置 3 回蒸留	-	24 段相当	$3 \sim 7 \times 10^{-5}$
大規模装置（理論段 20 段） 1 回蒸留	-	20	$6.6 \times 10^{-5}$

表 4.10: 理論段と蒸留による除去率

#### 4.6.4 混合物の単純蒸留による鉛除去

純物質での蒸留結果は頭打ちの傾向が見えるものの、 $10^{-5}$  を達成した。この結果を踏まえて、混合蒸留での除去率を確認する。混合蒸留ではまず高沸点成分である PPO を入れない条件で、混

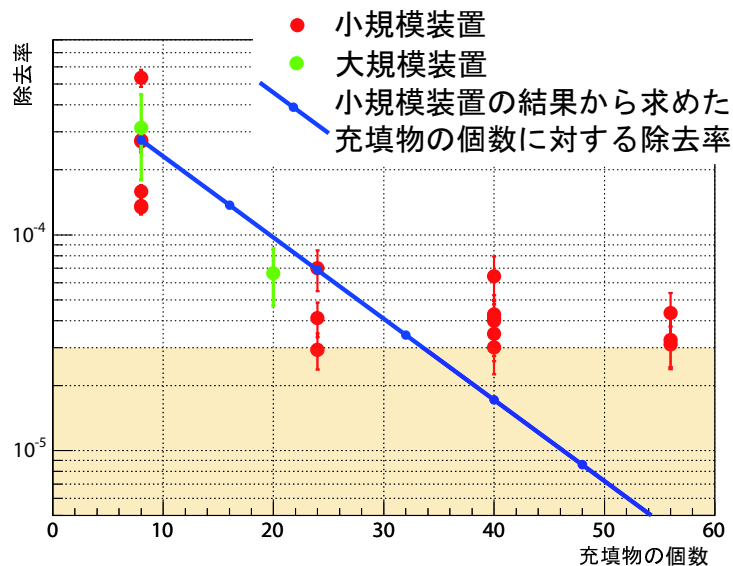


図 4.21: 小規模装置での NP の複数回蒸留の結果 (赤い点) と大規模装置での結果 (緑の点) を充填物の個数を横軸としてその除去率を示したもの。青線は小規模装置の 1 回の蒸留による除去率  $\frac{1}{2}$  から見積もった充填物の個数に対する除去率

合蒸留での温度や蒸留の振る舞いを確かめ、その後最終的な目的である PPO を含めた液体シンチレーターの蒸留を行う。

#### ノルマルパラフィンとプソイドクメンの蒸留方法

液体シンチレーターの構成成分の中で最も沸点の高い PPO を除いた溶媒 (NP+PC) の蒸留を行った。装置は小規模ガラス蒸留装置を用いて PC と NP を連続的に採取した。採取したサンプルはデンスティメーターで PC と NP の比を測定し、蒸留前後での比の差が大きい時は補正する。またサンプルには PPO を 6.0g/l を添加して測定を行った。蒸留操作は単体での蒸留と違いはないが、温度の変化は PC の沸点に達した後、緩やか上昇して NP の沸点に達する。(図 4.22) 表 4.11 に実験条件を示す。

気圧 [hPa]	蒸留温度 °C	MO:PC[%](蒸留前)	MO:PC[%](蒸留後)
300	160	83:17	83:17

表 4.11: 実験条件

#### 液体シンチレーターの蒸留

小規模ガラス装置での液体シンチレーターの蒸留の目的は、まず第一に液体シンチレーターという混合物が蒸留できるかを確認することである。液体シンチレーターの場合は純物質での蒸留

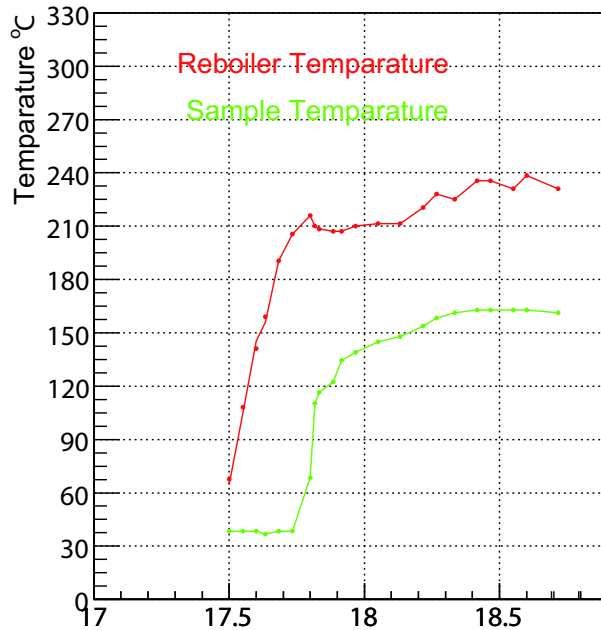


図 4.22: NP+PC 混合蒸留での温度変化

とは異なり、混合物の蒸留となるため常圧において 160 ~ 360°C に及ぶ広い温度帯での蒸留となる。実際の KamLAND で建設される予定の装置では、液体シンチレータの状態から蒸留操作を開始することになっており、混合物での蒸留効率や蒸留の振る舞いや、操作の安定性などの検証は非常に重要である。そのため、液体シンチレータの蒸留では、なるべく実機に近い状態で蒸留操作を連続して行うことが必要である。そして蒸留操作が行えることを確認した後、蒸留装置で連続蒸留を行った時の除去率を確認する。混合物である液体シンチレータの蒸留は実験の方法は図 4.23 に示した。まず KamLAND の液体シンチレータに酸化トリウムのパブリングを行う。KamLAND の液体シンチレータは 1.5g/l しか PPO が含まれていないため、このままでは蒸留により PPO を採取することは難しい。そのため 30g/120ml の PPO を追加する。沸点の低いプソイドクメンとノルマルパラフィンの蒸留においてはオイルバスを用いて 25hPa 下で蒸留を行う。プソイドクメンとノルマルパラフィン採取後、オイルバスからマントルヒーターに熱源を変えて同じ装置のまま、20hPa 下において PPO の蒸留を行う。PPO の蒸留に切り替える際、PC と NP を連続的に採集したフラスコは用いず、違うフラスコに採取する。その理由は PPO の量は PC と NP に対して非常に微量であり、またもし PC と NP の蒸留中に PPO が混入するようなことがあれば、その PPO の量を差し引いて蒸留された PPO を添加する必要があるためである。蒸留後は 3 成分での蒸留であり PPO を含むため、ガスクロマトグラフィーにて PC と NP のサンプルを測定し PPO の量を確認したのち PPO を添加して再度測定した。蒸留の実験条件は表 4.12 に示す。

## 結論

図 4.24 より、NP+PC の混合物と LS の蒸留の場合、蒸留 1 回目でおおよそ  $3 \times 10^{-3}$  の除去率であった。純物質での蒸留より 1 桁ほど除去率が落ちてしまった原因として、2 つ原因が考えられ



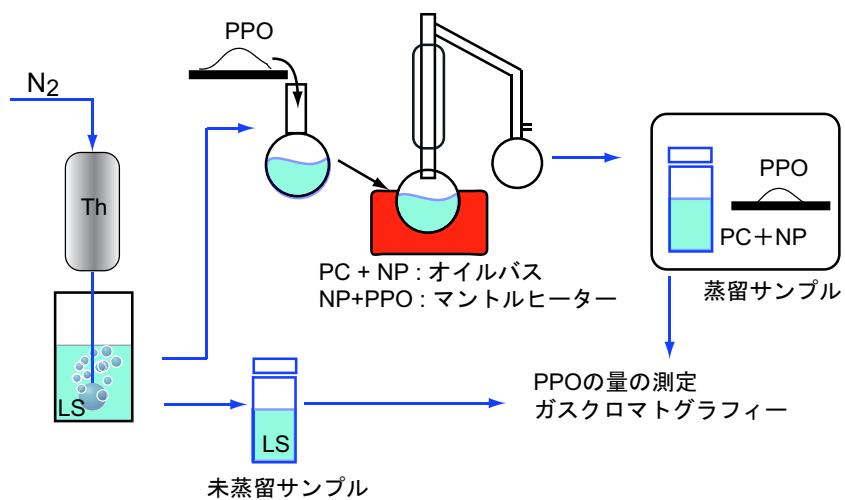


図 4.23: 液体シンチレーターの連続蒸留での手順

試料	気圧 [hPa]	蒸留温度 °C
PC	25	65
NP	25	103
PPO	20	214

表 4.12: 実験条件

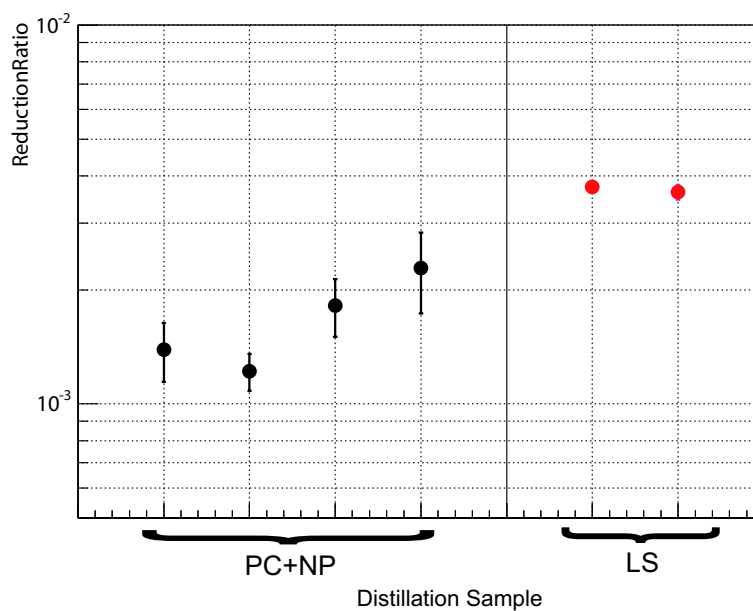


図 4.24: 混合物の1回の蒸留操作での鉛の除去効果

る。1つ目は混合蒸留にしたことにより蒸留の安定度が落ち、蒸留中に気液平衡状態が保てず分離性能が悪くなってしまったことが考えられる。2つ目は混合蒸留での温度帯に沸点をもつ有機鉛の存在である。1つ目については熱源ををマントルヒーターからオイルバスに変え、急激な温度変化を起こさない状態で蒸留を行ったが結果は変わらなかった。もう1つの検証の方法として大規模装置による混合蒸留があるが、現段階では大規模装置での混合蒸留は行っておらず、今後の課題である。2つ目については、蒸留中の各温度帯の成分を個別に取り出しそのアクティビティを測定することで、ある温度帯に低沸点の放射性鉛化合物が存在するか否かを確認できると考えた。この実験については次節にまとめる。

#### 4.6.5 混合蒸留における除去率の温度依存の検証

純物質での除去率が $\sim 10^{-4}$ とよかったことから、混合物での除去効率の悪化は純物質蒸留以外の温度帯での有機鉛等の低沸点鉛の存在が予想される。このことを検証するために、PCとNPの混合物を温度ごとに区切ってサンプルを採集し、そのアクティビティを調べる。

##### 蒸留方法

温度帯によるアクティビティを測定するために図 4.25 で示すように、No.1~No.7 までのサンプルを採取した。図 4.25 で赤色で示したところは純物質 PC と NP の蒸留を行っている温度帯である。各温度帯で採集したサンプルに、PC と NP の濃度の補正を行って測定するために、PC と NP の比を 50:50 にして行った。補正方法は液体シンチレーターの蒸留と同じ手順で行った。蒸留の条件を表 4.13 に、また採集したサンプルについては表 4.14 に示す。蒸留により採取したサンプルの PC と NP の量を測定し、蒸留したサンプルが PC と NP が 50ml づつになるように PC と NP を用いて補正する。未蒸留のサンプル 100ml を 1 とし重みをつけてアクティビティを測定する。

試料	気圧 [hPa]	蒸留温度 °C	試料の量 [ml]
PC	20	60	50
NP	20	98	50

表 4.13: 実験条件

##### 結論

4.27 より、次の温度帯の除去効率が悪化している傾向が見られる。

- No.1 の PC 蒸留の 60°C までの蒸留物を採集したサンプル
- No.3 の純物質 PC 蒸留直後の蒸留物を採集したサンプル
- No.5 の PC と NP の中間での蒸留物を採集したサンプル

この現象は単体蒸留においてもみられ、PC を蒸留開始直後 5 分間のサンプルとその後のサンプルを比較すると、開始直後 5 分間のサンプルのアクティビティが 5 分経った後の蒸留サンプルに比

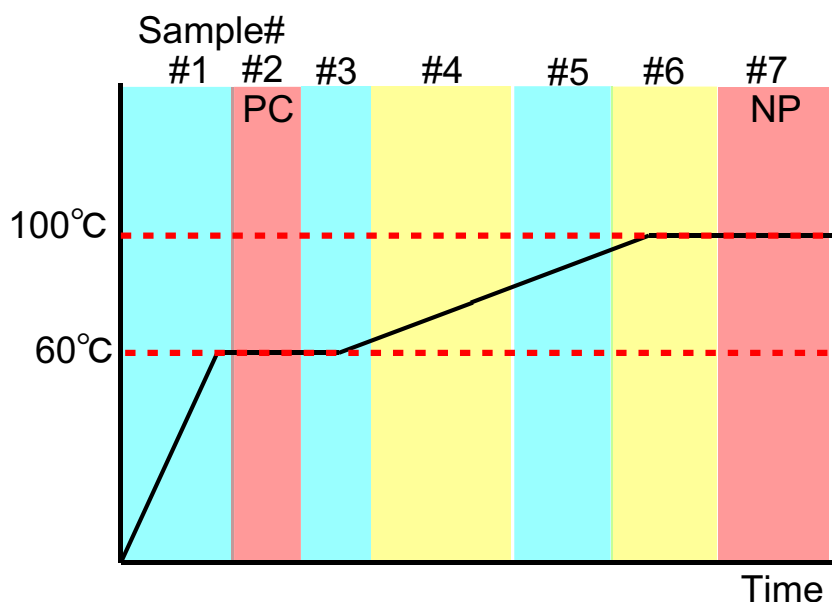


図 4.25: 混合蒸留によるサンプル採取の温度帯

サンプル	蒸留温度°C	採集サンプル [mℓ]	補正のため添加した サンプル [mℓ] PC	補正のため添加した サンプル [mℓ] NP
Initial	-	PC 50.0 NP 50.0	-	-
PrePC	~60	PC 25.0	PC 25.0	NP 50.0
PC	60-62	PC 50.0	-	NP 50.0
	62-64	PC 24.5 NP 0.5	PC 25.5	NP 49.5
After PC	64-75	PC 23.5 NP 1.5	PC 26.5	NP 48.5
Before NP	75-95	PC 28.5 NP 21.5	PC 21.5	NP 28.5
NP	95-99	PC 8.0 NP 32.0	PC 42.0	NP 18.0
NP	99-100	PC 3.6 NP 16.4	PC 46.4	NP 33.6

表 4.14: サンプル条件 : 採集したサンプル + 添加したサンプル = (PC=50[mℓ]) + (NP=50[mℓ])

べ、1桁高い傾向が見られる。また同様の現象がNPの蒸留においても見られている。これらの結果からPC、NPの純物質の蒸留前の温度帯において放射性鉛化合物の沸点の存在が考えられる。しかし4.27の純物質PCの蒸留であるNo.2と純物質NPの蒸留にあたるNo.7のアクティビティについては、純物質で行った除去率と変わらない良い除去率が得られており、PC、NPの蒸留温度帯での採取を行うことで、混合物の蒸留においても $10^{-5}$ の除去率は達成できる可能性がある。

#### 4.6.6 大規模ガラス蒸留装置: テストベンチ

これまでの小規模ガラス蒸留装置での結果をさらに検証するため、KamLANDでの蒸留の予備実験として、東北大学に大型の蒸留装置を製作した。テストベンチのスペックと蒸留装置の構造

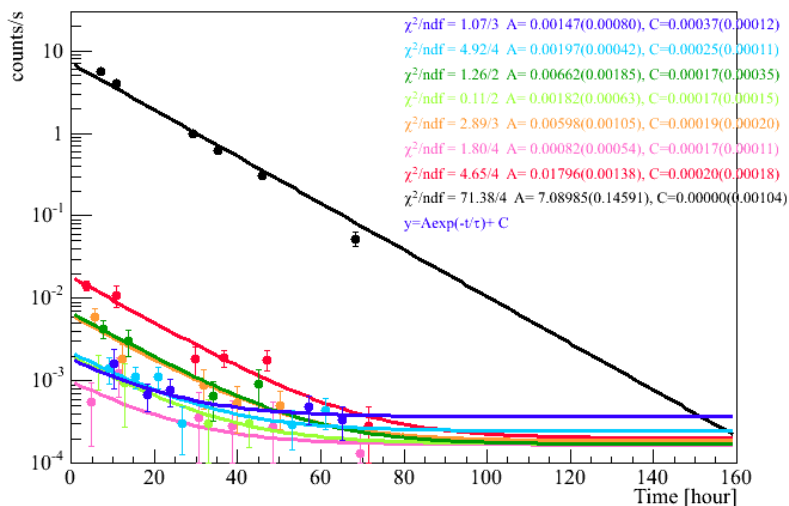


図 4.26: 混合蒸留による温度帯別除去率のグラフ：各サンプルに補正した重みをつけた結果

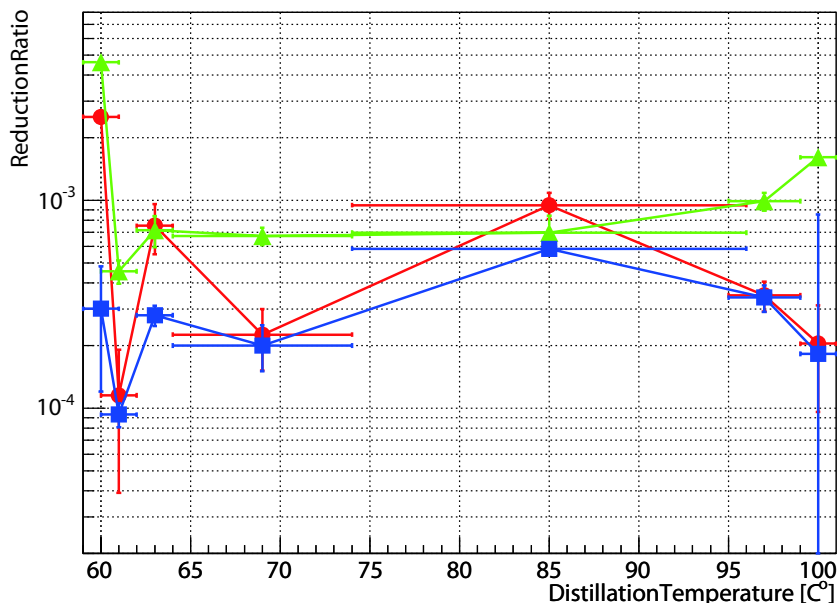


図 4.27: 混合物の温度帯別除去率：横軸は温度を表し、データの横軸のバーは蒸留物を採集した時間を表わし、一連の蒸留操作は同色で示した

を図 4.28 に示した。

蒸留塔はプレヒーティングが行えるタンクと蒸留塔が 2 塔で構成されている。1 塔目はプソイドクメンとノルマルパラフィンの蒸留を行い、2 塔目は PPO の蒸留を行えるスペックとなっており、2 塔を使用しての液体シンチレーターの連続蒸留を行うことができる。1 塔目、2 塔目共に単体蒸留による蒸留装置として上記の実験においてすでに使用している。また 2 塔目の装置は  $^{222}\text{Rn}$  の

除去実験にも使用されている。この装置もまた一部（配管の一部は金属）を除きガラスでできている。装置の左側に設置されている操作盤は温度、圧力の表示だけでなく空焚きによる温度上昇や、蒸留装置の破損などにより真空が保てないなどの安全に関わる警報装置が備わっている。また蒸留中の温度や圧力などのデータは操作盤から直接 LabVIEW に取り込み自動計測している。蒸留原理自体は小規模ガラス装置と大差はないが、以下の目的のために還流比の調節や、理論段の変更、取り出し温度を精度良く決定できるようになっている。

## 目的

このテストベンチの目的は4つある。今まで小型装置で調べてきたパラメータが装置の大型化によってどのように変わるのがこのテストベンチでの実験全体を通した大きな目的である。

### 1 蒸留の振る舞い

大型化することにより、塔の内径や、内部の充填物の数が変わる。また今までの小規模ガラス蒸留装置では還流という操作を特別に行うことができなかったが、この操作を入れたことによる、蒸留の振る舞いを調べる。

### 2 除去効率の変化

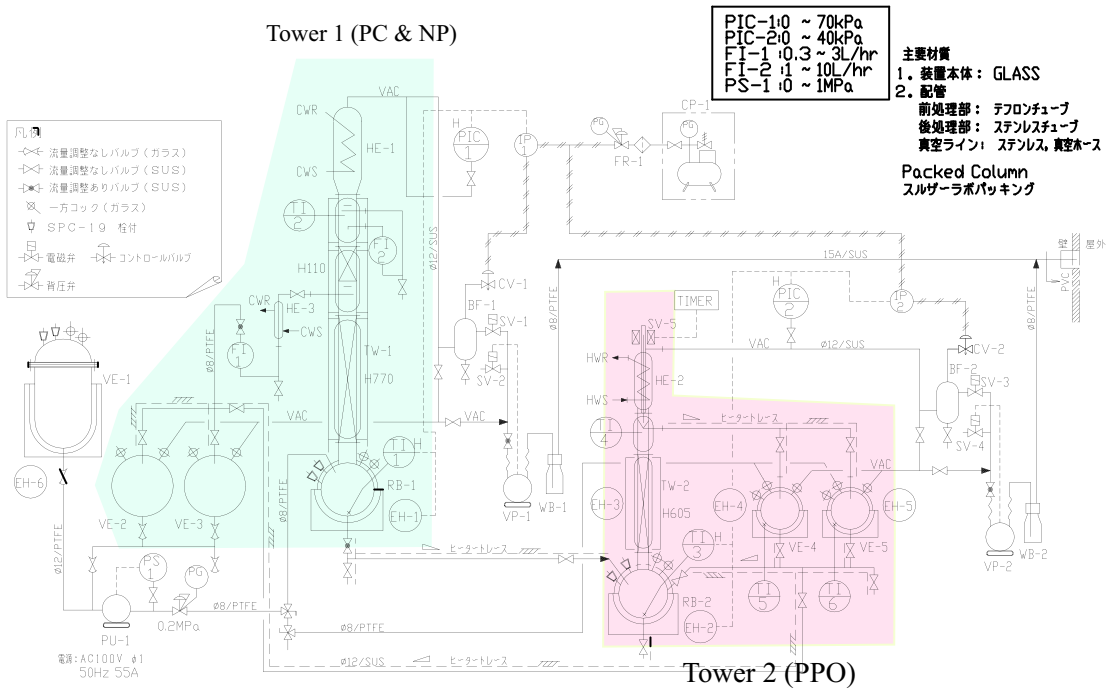
小型装置においては1回蒸留で除去効率  $10^{-4}$  を達成している。大型装置でこの除去効率が再現できるかということと、充填物（理論段）の数による除去効率の変化、また還流操作による除去効率の変化を調べる。充填物の数、還流比については実機においても重要なパラメータでとなる。

### 3 液体シンチレーターの性能評価

液体シンチレーターを大型装置で蒸留した際、透過度、発光量の変化を調べる必要がある。ただし、現在のテストベンチではリークが大きいため酸素による液体シンチレーターでは蒸留液の劣化（黄変）が起こるため、装置の増し締めや、コネクターの交換などを行い、より高真空を保てるようにしなくてはならない。

### 4 液体シンチレーターを用いての連続蒸留

テストベンチでは実機に近い状態を作り出せるよう、液体シンチレーターからの連続蒸留を減圧を保ったまま1塔目から2塔目に移せるよう設計されている。また PPO の蒸留において重要な配管へのヒーターレースもされており、実際の蒸留で PPO が途中で固化することなく蒸留が行われるかについても試験できる。テストベンチでは連続した蒸留を行うことで、蒸留操作中の不具合がないかを確認するだけでなく、様々な連続運転、バッチ処理など実機で想定されるオペレーションについても検証できる。



VE-1	PU-1	VE-2,3	HE-1	TW-1	RB-1	VP-1
Feed Tank 5L EH6 300W	Feed Pump 定量ポンプ ~3L/hr	Receiver 5L	Condenser	Packed Column φ50/H880	Reboiler 3L	Vac.Pump 40L/min 到達: 1 kPa
HE-2	TW-2	RB-2	VE-4,5	VP-2	HE-3	HW-1
Condenser	Packed Column φ25/H605	Reboiler 1L EH2	Receiver 1L EH4,5	Vac.Pump 40L/min 到達: 1 kPa	冷却器	Hot Water 80℃ 電源 1 4 A
BF-1,2	WB-1,2	CP-1				
Buffer 5L	Wash Bottle 1L	Compressor 19L/min				

図 4.28: 大規模ガラス蒸留装置の全体図 テストベンチ

#### 4.6.7 実験結果の実機への反映

いままで述べた蒸留法による鉛除去の結果を踏まえて、実機について述べる。実験では酸化トリウムのパブリングを行った溶液を用いて蒸留操作による鉛の除去率を求めた。ここでは実験での放射線源のアクティビティと実際の KamLAND でのアクティビティの比較を行い、実験による削減値が実際の KamLAND のアクティビティに対して現実的かどうか調べた。使用した 2inch-PMT の分解能は 20% として、パブリングしたときのカウントレートから、初期状態の溶液中の鉛の存在量を計算する。

$$\text{LS}50\text{ml} : 100[\text{counts}/\text{sec}] \rightarrow 100\text{Bq}/50\text{ml} \quad (4.3)$$

$$\text{LS}50[\text{ml}] = 39[\text{g}](\text{Density}_{\text{LS}} = 0.78[\text{g}]) \quad (4.4)$$

$$\text{Activity}[\text{g}/\text{g}] = \frac{\text{counts}[\text{Bq}/\text{kg}] \times A[\text{kg}] \times \tau[\text{sec}]}{N_A} \quad (4.5)$$

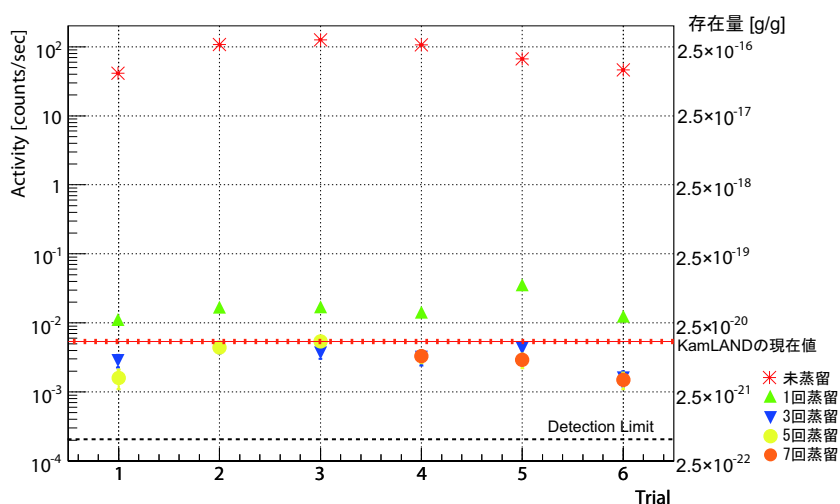


図 4.29: ドデカン複数回蒸留の結果：縦軸はアクティビティ、横軸は試験回数、破線は測定限界を表す

図 4.26 は、実験値を存在量に変換して、KamLAND でのアクティビティを比較し易くしたものである。本研究の実験では、初期状態でのカウントレートは 0.05~10Bq/ml である。KamLAND の現在のアクティビティは  $\sim 10^{-20}[\text{g}/\text{g}]$  であることより、実験では 1~3 桁程度 高い状態で実験を行っているが、初期状態のアクティビティの高さに関わらず、除去率はほぼ一定である。これらのことから本実験における結果は、実際の KamLAND のアクティビティレベルで行っても再現可能といえる。

## 4.7 まとめ

純化前と純化後で  $^{210}\text{Pb}$  の最大除去率は、ノルマルパラフィンの複数回の結果より  $2.9 \times 10^{-5}$  となった。最大除去率が  $\sim 10^{-5}$  で止まる理由としては、低沸点の有機鉛化合物の存在が考えられる。また PC と NP の混合物や液体シンチレーターの蒸留においては、 $10^{-3}$  程度の除去率しか得ることができなかったが、これは有機鉛化合物の沸点が、液体シンチレーターの蒸留温度帯に存在しているためと考えられる。本研究において、混合物の蒸留温度と除去率の関係を詳細に調べることにより、混合物の蒸留においても、温度の精密制御によって、純物質と同じ程度の除去率を達成できる可能性が示せた。

本実験の結果に、 $^{85}\text{Kr}$  の実験により示された削減値  $1.3 \times 10^{-5}$  と  $^{40}\text{K}$  の削減値  $3.8 \times 10^{-2}$  を合わせた KamLAND のシングルスペクトラムの予想は図 4.30 のようになった。この除去率においては  $500\text{keV} \leq E_{\text{visible}} \leq 800$ 、有効体積 4m において一日あたりの事象数は表 4.15 となり、 $S/N=1.88$  となり、目標は達成していないが十分に太陽ニュートリノ観測が可能となる結果を実験的に示した。

	event/dey/fiducial
$^7\text{Be}$	34.5
$^{210}\text{Bi}$	4.0
$^{85}\text{Kr}$	$\leq 9.9$
$^{40}\text{K}$	4.4

表 4.15: 実験による最大除去率を達成した時の、1日あたりのイベントレート

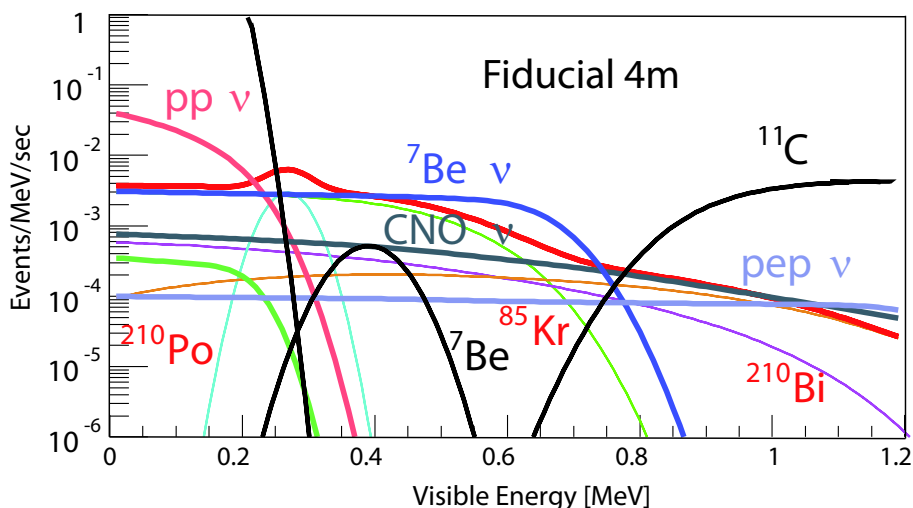


図 4.30: KamLAND の低エネルギー領域のスペクトラム：実験による最大除去率での削減を想定した場合

来年にはこの実験結果に基づいて、実際の KamLAND の液体シンチレーターの蒸留を行う実機が建設されることとなっている。詳細は 6 章の「将来計画」にて述べる。



## 第5章 液体シンチレーター性能への蒸留の影響の評価

4章蒸留法により $^{212}\text{Pb}$ の高い除去率が得られることがわかった。この除去率は今後の太陽ニュートリノ観測に向けた純化計画において現実的な値であり、現在のところ、これ以上の除去率をもつ方法はない。しかし、この蒸留方法は減圧して温度を低くしているとはいえ、通常のKamLANDの状態では与えることのない熱処理である。また4.1.2「蒸留で想定される問題点」において酸素存在下での液体シンチレーターの加熱は不純物を生成についても示した。よってこの章では、蒸留という熱処理が液体シンチレーターの性能に変化を与えないかを評価する。特に、ここでは発光量の評価を行う。発光物質であるPPOは常温では固体で存在し、蒸留処理においては液体シンチレーター構成物質の中で、最も高い沸点をもつ。発光量はカムランドの測定において重要なパラメータであり、発光量の減少は、KamLANDの測定に直接影響を与える。今回、熱処理を加えた時の、PPOと液体シンチレーターの発光量の変化を調べた。

### 5.1 発光現象

液体シンチレーターは溶媒であるPC(NP)と溶質であるPPOからなっており、次の過程を経て発光現象が起こる [21]。

- 1 放射線エネルギー吸収による溶媒分子の励起 (分子内過程)  
↓
- 2 溶媒分子間のエネルギー移行 (分子間過程)  
↓
- 3 励起溶媒分子から溶質分子へのエネルギー移行 (分子間過程)  
↓
- 4 溶質分子からの発光 (分子内過程)

放射線エネルギーが直接溶質分子に吸収される確率はきわめて低く、励起溶媒分子からのエネルギー移行によって発光する。つまり発光量が維持するためには、上記の [1]~[4] の過程が全て維持されなくてはならない。そのため溶質であるPPOの発光はもちろんのこと溶媒であるプソイドクメン、ノルマルパラフィンにより行われる [1]、[2]、[3] の過程が維持できているかどうかについても調べる必要がある。各過程を阻害するクエンチングを図5.1に示した。これによると特に加熱や蒸留操作後の化学クエンチング、色クエンチングの検証は重要である。

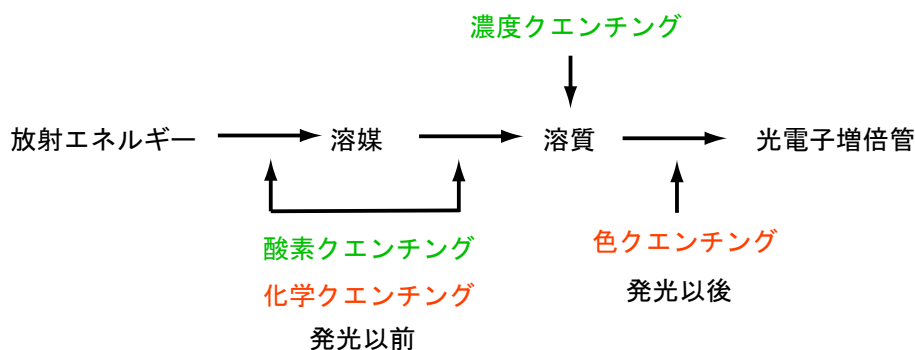


図 5.1: エネルギー移行過程におけるクエンチング

発光量の評価方法については次節で述べることにし、発光量の低下が KamLAND に及ぼす影響について述べる。発光過程のいずれの過程の効率低下においても、次のことが言える。KamLAND では発光過程で、1MeV のエネルギーが 300p.e(光電子数) の光に変換され、約 300p.e/MeV と表される。発光量が減少した場合、その割合を  $\alpha$  とおいた時、 $\sim \alpha \times (300\text{p.e/MeV})$  となり、KamLAND で観測する光電子の減少に繋がる。このことは観測するエネルギー  $E_{\text{visible}}$  の減少でもある。ビシブルエネルギーの減少に伴い、エネルギー分解能が悪くなる。エネルギー分解能の式は

$$\sigma = \frac{7.4\%}{\sqrt{E_{\text{visible}}}} \quad (5.1)$$

と書ける。この式から発光量の減少割合を  $\alpha$  とした時、分解能は  $\frac{1}{\sqrt{\alpha}}$  倍となる。現在の KamLAND では、 $^{40}\text{K}$  の 1.4MeV の  $\gamma$  線の観測値は、各測定時ごとに約 2% の揺らぎをもつ [22]。このことから、1% 以内の減少であれば、現在の KamLAND おいて深刻な問題になることはない。本実験での発光量の評価には 1% 以内の減少であれば、発光量が維持しているとする。

## 5.2 評価方法

発光量の実験では、以下のような順序により発光量の評価を行う。

- 1 液体シンチレーターの溶媒蒸留温度 ( $\geq 100^\circ\text{C}:20\text{hPa}$ ) での液体シンチレーターの加熱試験後の発光量  
液体シンチレーター蒸留の最終段階である PPO の蒸留温度より低い温度において、溶媒、溶質の両方が変化していないかを確認する。PPO はさらに高い温度に対する耐性を調べる必要があるが、溶媒はこの温度で蒸留されるため、この加熱実験での実験結果により、溶媒により行われる発光過程が損なわれていないかを評価できる。
- 2 液体シンチレーターの溶媒蒸留温度 ( $\geq 100^\circ\text{C}:20\text{hPa}$ ) での液体シンチレーターの加熱試験後の発光スペクトル  
実験 [1] で発光量を測定したサンプルの発光スペクトルを測定することで、固有の波長における減衰がないかを確認する。
- 3 PPO の純物質のみを用いた蒸留操作後の発光量  
溶質である PPO のみで、発光過程で溶質に関わる部分での変質がないかを確認する。

#### 4 液体シンチレーターを用いた蒸留操作後の発光量

プソイドクメン、ノルマルパラフィンと混合させて蒸留することで、PPO が溶媒物質と反応したり変質するなど、発光量が減少しないかどうかを調べる。

2 と 3 の実験では同仁化学社の 2,5-Diphenyloxazole (PPO) を使用した。1 と 3 の実験では KAMLAND で使われている液体シンチレーターを使用したため、Packard 社の PPO である。今回の実験ではこの 2 種類の PPO の性質の差はないものとして実験を行った。

### 5.3 発光量の測定

この節では後方散乱の測定法について述べる。

#### 5.3.1 測定原理

線源は  $^{137}\text{Cs}$  を用い、662keV の  $\gamma$  線を使用した。 $\gamma$  線は物質と以下の 3 つの相互作用をする。

- 1 光電効果
- 2 コンプトン効果
- 3 電子対生成

ターゲットは液体シンチレーターであるため、その主な構成元素は炭素である。炭素と光子の相互作用の反応断面積から 662keV 付近では、炭素と光子の相互作用はコンプトン効果が支配的である。コンプトン効果は光子と電子が衝突して光子が散乱される現象で、反跳電子のエネルギーは以下のように計算される。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (5.2)$$

ここで  $m_0c^2$  は電子の静止質量で 0.511MeV である  $E_e$  は  $\theta = 180^\circ$  のとき最大となる ( $=E_e$ )。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{m_0c^2}{2E_\gamma}} [\text{MeV}] \quad (5.3)$$

#### 5.3.2 後方散乱

$^{137}\text{Cs}$  線源からの後方散乱 477keV (散乱角  $\theta = 180^\circ$ ) にて液体シンチレータにエネルギーを落として発光させ、NaI で後方散乱  $\gamma$  線 185keV を同時計測する。同時計測することにより、バックグラウンドに邪魔されずに後方散乱したイベントのみを取り出すことができる。サンプルは加熱・蒸留処理前と後の 2 つのサンプルを 150ml のバイアルに入れ、2 インチ PMT と NaI を用いた後方散乱にて測定を行った。NaI 側の 185keV の領域を図 5.2 の左図の赤線の領域を選択してその LS 側のイベントを集めると、図 5.2 の右図の赤線の領域が得られる。

このように同時計測をするとコンプトンエッジだけが得られる。これから 477keV の  $\beta$  線に対するスペクトルが得られる。このスペクトラムを Gaussian + linear でフィッティングして得られた中心値 (ADC チャージ) を発光量とする。図 5.3 は後方散乱の装置と回路である。

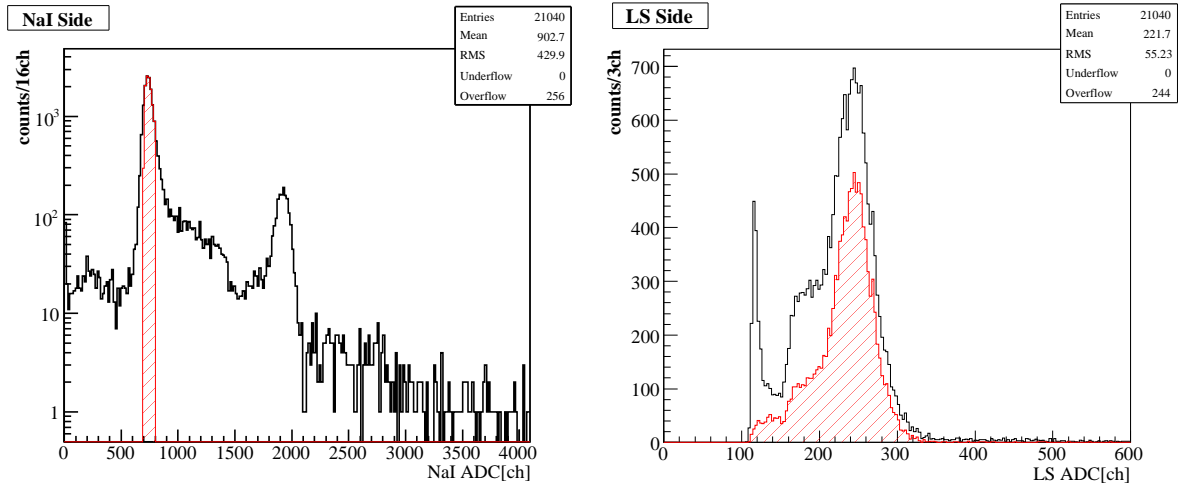


図 5.2: 後方散乱のスペクトル: 左図は NaI のエネルギースペクトルでピンク色の部分でカットした。右図は PMT 側のエネルギースペクトルで NaI のカットによりピンク色の部分が得られた。

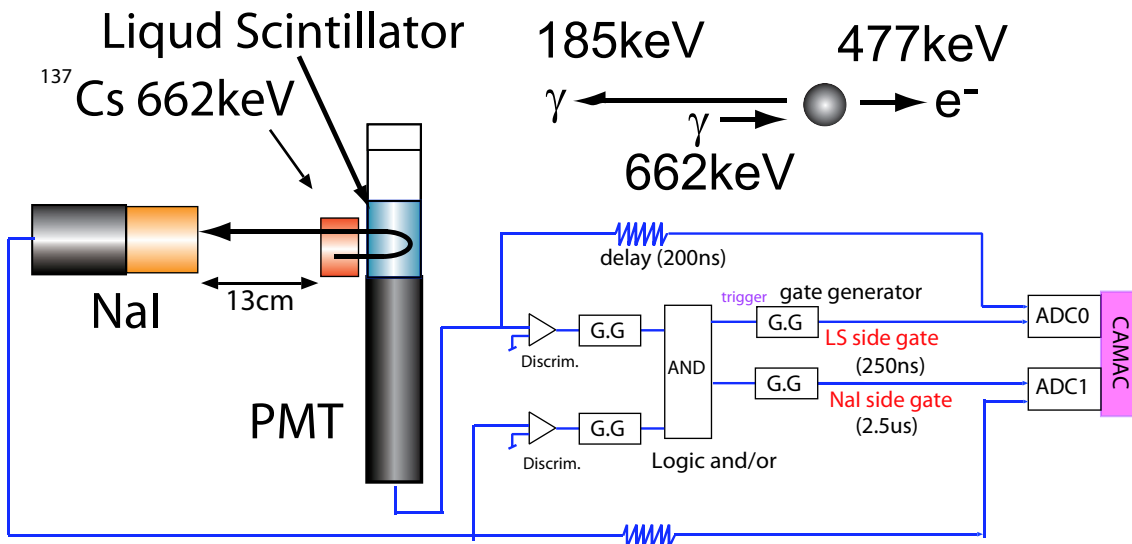


図 5.3: 発光量測定の装置と後方散乱の回路

## 5.4 加熱・蒸留実験

ここでは 5.2 「評価方法」 で表記した実験について順に述べる。

### 5.4.1 液体シンチレーターの加熱処理: 発光量の測定

PPO は加熱すると酸素により黄変することがわかっており、また液体シンチレーターとして加熱した場合の液体シンチレーターについても図 4.1 より、溶存酸素濃度高いときでの加熱は不純

物を生成することが確認されている。しかし加熱において変質しない溶存酸素濃度は未知であり、また不純物の発光量への影響もわかっていない。今回は溶存酸素濃度を段階的に変化させて加熱試験を行いその発光量を調べた。

#### 実験方法

液体シンチレーターの加熱処理は超高真空用のコンフラッドフランジで密封が可能なフラスコを用い、装置のバッファーとして真空実験 He 採集用のバルーンを用いた。装置は図 5.4 に示した。実験は常圧行った。実験条件を表 5.1 に示した。

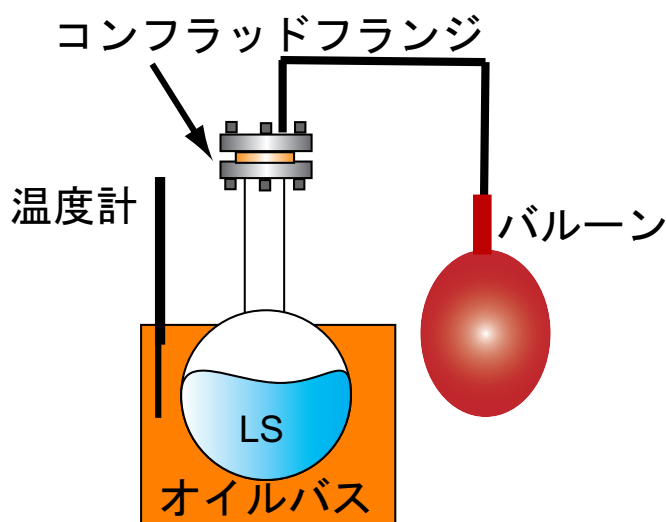


図 5.4: 液体シンチレーターの加熱装置

温度°C	加熱時間 [h]	溶存酸素濃度 [ppm]		
110	2	2ppm	-	30ppm 70ppm
120	2	2ppm	15ppm	30ppm 70ppm

表 5.1: 液体シンチレーターの加熱処理での実験条件

#### 結果

結果を図 5.5 に示した。図 5.5 より、発光量は溶存酸素濃度に相関があることがわかる。しかし溶存酸素濃度を低く保っている条件では発光量の落ちは見られず、発光量の減少が 1%以内に収まっている条件は、110°Cでは 30ppm 以下、120°Cでは 15ppm 以下である。オレンジ色のバンド (9ppm~15ppm) は、KamLAND の純化装置エリアの 1m<sup>3</sup> タンクから直接取り出した液体シンチレーターの溶存酸素濃度である。その測定誤差は大きいものの、実際の KamLAND の液体シンチレーターの最大溶存酸素濃度に近いのではないかと考えられる。現在 KamLAND 検出器内部が

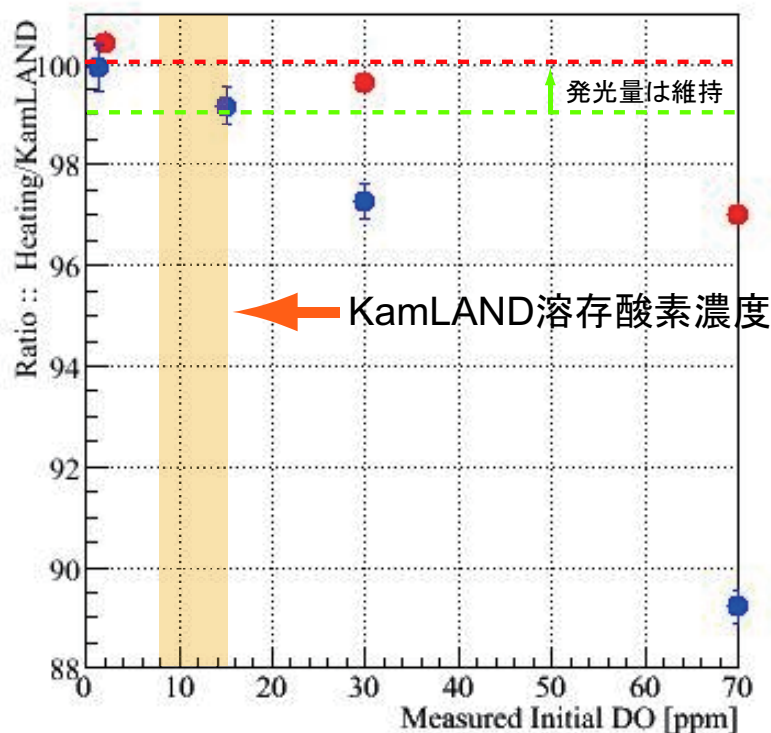


図 5.5: 溶存酸素濃度 (DO) を変化させた時の加熱後の発光量の変化：縦軸は KamLAND の液体シンチレーターの発光量と比を取った値、横軸は加熱前の溶存酸素濃度、オレンジ色のバンドは KamLAND で予想される溶存酸素濃度、赤いデータは 110°C、青いデータは 120°C

ら、直接液体シンチレーターを汲み出して、窒素グローブボックス内で精密測定をするという計画があり、より正確な値が得られると期待できる。この値と、発光量の維持している溶存酸素濃度を比較する。15ppm 以下であれば発光量は維持していることから、現在の KamLAND の溶存酸素濃度において加熱処理をしても問題は無いといえる。液体シンチレーターの溶媒成分の温度帯では、溶存酸素濃度が十分低く保たれている限り発光量は維持することが示せた。

#### 5.4.2 液体シンチレーターの加熱処理:発光スペクトルの測定

発光量は発光スペクトルの積分値であり、発光の総量は知ることができる。しかし各波長ごとのふるまいはわからない。KamLAND では 400[nm] 以下の領域で発光、吸収再発光が起こるため、波長ごとの影響も考慮しなければならない。加熱処理により固有の波長に減衰が見られないか確認を行う。

## 実験方法

分光蛍光光度計を用いて測定する。まず蛍光分析法について述べる。分子に光を照射すると光を吸収した後、そのエネルギーを光として放出することがある。これを蛍光と呼び、この光のスペクトルと強度を測定することにより、試料の性質と濃度を調べることができる。蛍光分析法の特徴として、試料の濃度が低濃度であれば、吸光分析法に比べて高感度な測定が可能なのが挙げられる。これは吸光分析法が入射光と透過光のわずかな差を利用するのに対し、蛍光分析法ではゼロレベルに対する光量を測定するからである。

装置のしくみは図 5.6 に、その仕様と設定値については表 5.2 にまとめた。正確な蛍光強度測定のために、光源は広い範囲で強い連続スペクトルが安定して得られるものが望ましい。本実験で用いた装置ではキセノンランプが用いられている。この光源から放射された光はまず励起分光器により分光され試料に照射される。試料セルには 4 方向透明な無蛍光の石英セルを用いた。試料から放射された蛍光は蛍光側の分光器で分光されて、光電子増倍管に入る。

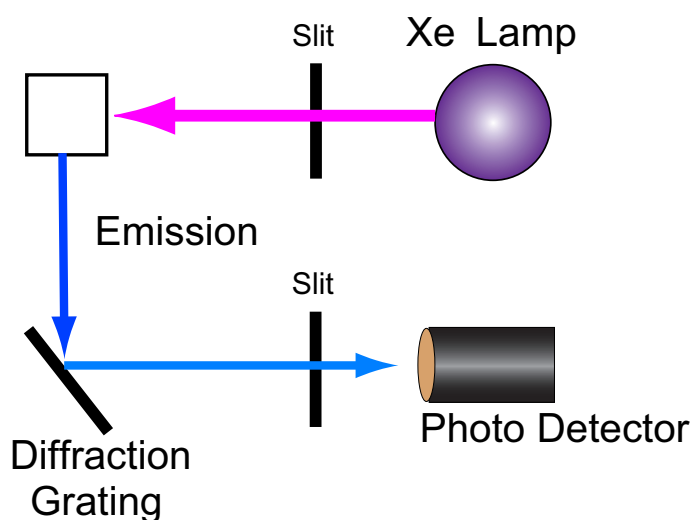


図 5.6: 分光蛍光光度計 : HITACHI F-2000

光源	キセノンランプ
セルサイズ	1cm cell
検出器	PMT (-400V)
励起光	220nm, or 300 nm
バンド幅	20mm

表 5.2: 分光蛍光光度計の仕様と設定値

## 結果

図 5.7 より発光量の減少と同じく溶存酸素濃度に依存した結果が得られた。図 5.8 は各波長をレファレンスである KamLAND の液体シンチレーターの発光スペクトルで割った図である。110°Cにおいても120°Cにおいても、15ppm 以下の溶存酸素濃度ではほぼ全領域にわたって維持しているが、15ppm 以上の溶存酸素濃度では 500[nm] 以下での減少大きくなる傾向が見える。360nm~400nm は KamLAND での吸収再発光に関係する波長であり、維持する必要があるため溶存酸素濃度を低減させて加熱、蒸留処理をする必要がある。現在のところ、KamLAND の溶存酸素濃度 15ppm 以下であれば、特異な波長における減少は見られない。

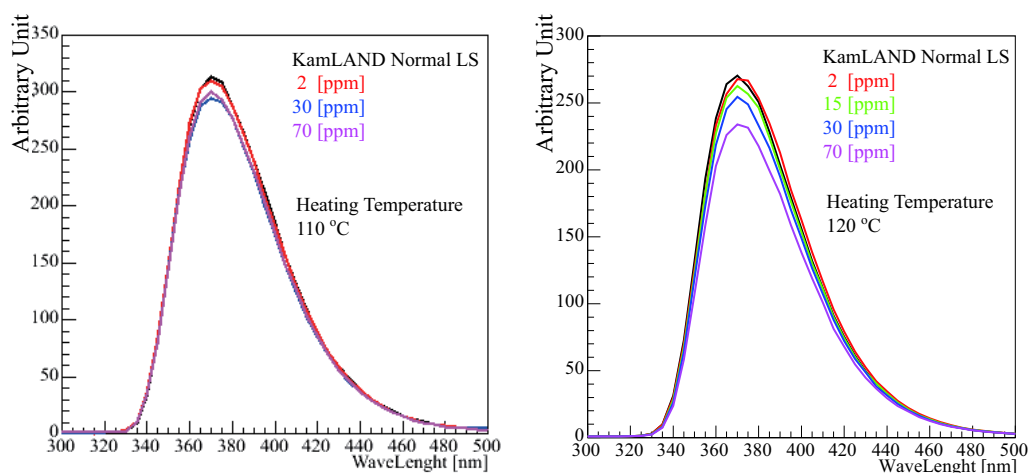


図 5.7: 液体シンチレーターを 110°C(左図)120°C(右図) で加熱した後の発光スペクトルの変化

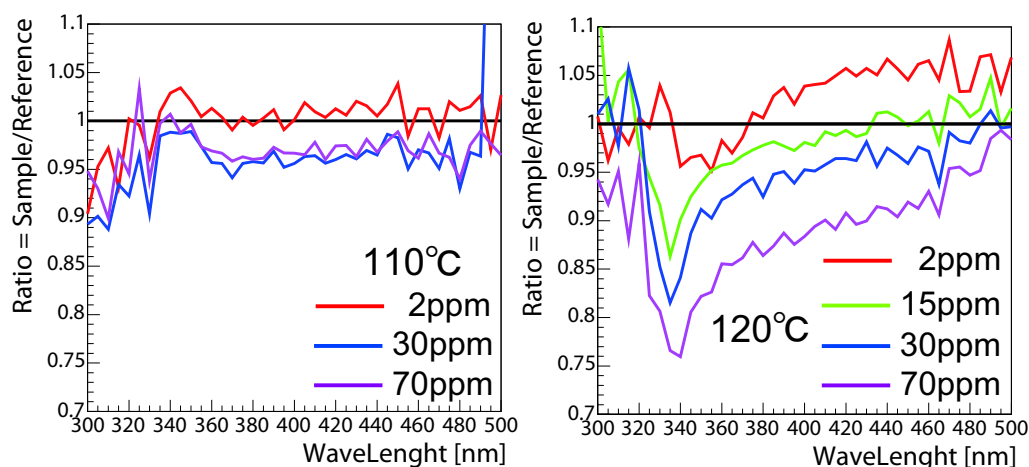


図 5.8: 液体シンチレーターを 110°C(左図)120°C(右図) で加熱した後の発光スペクトルのレファレンスとの比



### 5.4.3 PPO の純物質での蒸留

加熱実験の結果から溶存酸素濃度は発光量に影響を及ぼすことわかり、低溶存酸素環境下での蒸留が必要であることがわかった。酸素による発光量の減少が起こることと、PPO 自体が高沸点成分であることから蒸留操作は減圧をした状態で行うことが好ましい。

#### 実験方法

まず、蒸留条件下での溶存酸素濃度の見積もりを行う。20hPa で実験を行う時、加熱前のサンプル液の溶存酸素濃度は、一定の温度で一定量の液体に溶解する気体の量はその気体の圧力に比例することから、大気圧で  $\sim 70$ [ppm](詳細は付録 B に示す) の酸素濃度の時、20hPa では  $\sim 1.4$ ppm 程度となる。また温度が上がることにより液体内部の気体の量は減り、蒸留操作中は減圧し続けるので実際はさらに少ないと推測される。蒸留装置は図 4.9 の小規模装置を用いた。実験方法は 4.5.1 の純物質の単純蒸留と同じ手法で行った。蒸留後は PPO の溶解度が大きい PC に PPO を  $15\text{g}/\ell$  溶かしたサンプルを測定した。

実験条件を表 5.3 に示す。

圧力 [hPa]	蒸留温度 $^{\circ}\text{C}$	蒸留前のサンプル量 [g]	蒸留後のサンプル量 [g]
20	214	90	20 ~ 60

表 5.3: PPO の純物質での蒸留実験条件

#### 結果

各 5 時間測定した結果は図 5.9 のようになった。Ratio = 蒸留サンプルの発光量/未蒸留サンプルの発光量としたとき、Ratio =  $100.4 \pm 0.2$  % となった。

発光スペクトルについても、蒸留により得られた PPO を用いて作成した液体シンチレーターにて測定をおこなった。装置、設定値は 5.4.2 節と同じである。結果は図 5.10 に示した。その比を示したのが図 5.11 である。この図より蒸留操作においては発光スペクトルの減少は見られず、KamLAND の測定に必要な全波長において維持できたといえる。

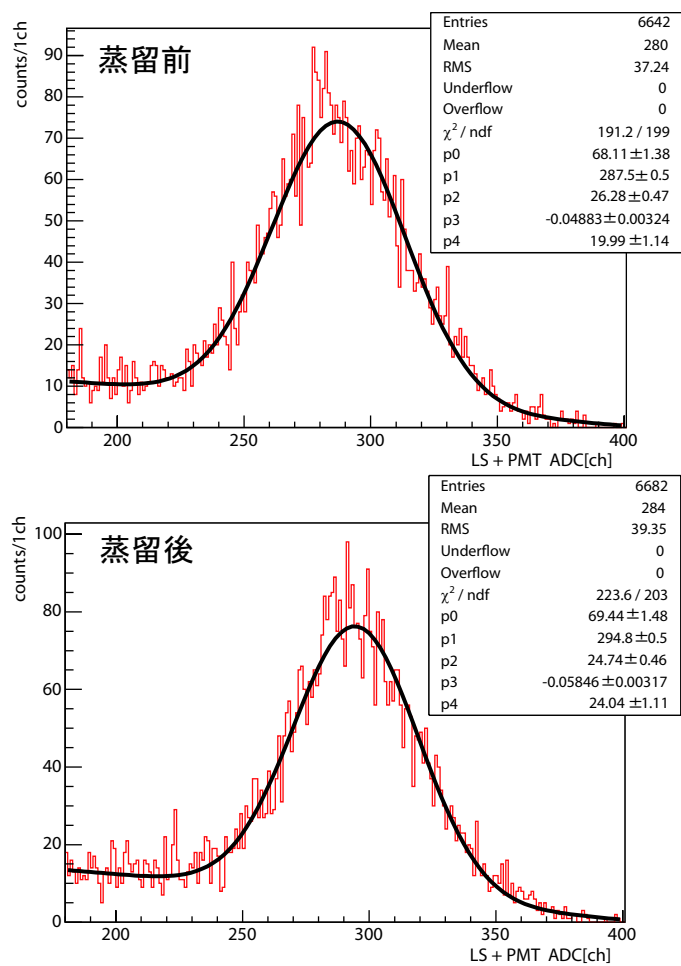


図 5.9: 純物質 PPO を蒸留したときの発光量の変化：上図は蒸留前、下図は蒸留後

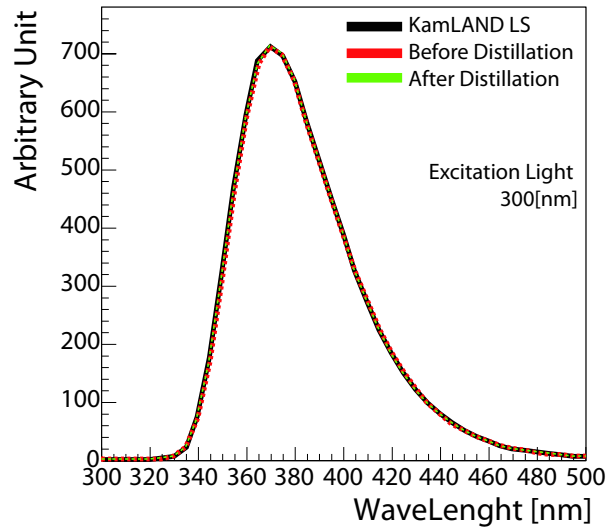


図 5.10: 純物質 PPO を蒸留したときの発光スペクトルの変化

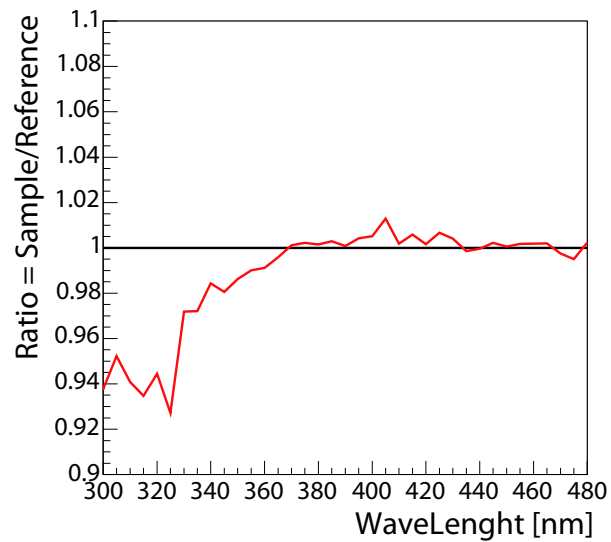


図 5.11: 純物質 PPO を蒸留したときの発光スペクトルの変化：蒸留前後での各スペクトルにおける比

#### 5.4.4 液体シンチレーターの蒸留

実験方法は 4.5.3 の液体シンチレーターの蒸留と同様の手順で行った。実験条件を表 5.4 に示した。

サンプル	圧力 [hPa]	最高蒸留温度°C
PC+NP	25	100
NP+PPO	20	215

表 5.4: 液体シンチレーター-での蒸留実験条件

#### 結果

各サンプルの発光量は図 5.12 のようになった。蒸留後のサンプルから、ガスクロマトグラフィーを用いて液体シンチレーターの各成分を測定し、KamLAND の液体シンチレーターと同じ構成比になるようにサンプルを作成した。この時添加する PPO の量は  $1.5\text{g}/\ell$  と少ないため、必ずしも蒸留前の液体シンチレーターの PPO の量と一致しない。そのため PPO の量による発光量の増減を考慮し、その誤差も含める。 $1.2[\text{g}/\ell] \leq \text{PPO}$  の量の時の発光量の ADC チャージはリファレンスサンプルである KamLAND の液体シンチレーターに対して  $3 \pm 0.2[\text{ch}]$  シフトすることがわかっている。この PPO の量による系統誤差は  $\pm 0.1\%$  となっている。また蒸留前後の PPO の値と発光量について表 5.5 にまとめた。

サンプル	ガスクロマトグラフィーで測定した PPO の量	発光量
蒸留前	PPO $1.48[\text{g}/\ell]$	$209.7 \pm 3.1[\text{ch}]$
蒸留後	PPO $1.21[\text{g}/\ell]$	$205.4 \pm 3.1[\text{ch}]$

表 5.5: サンプルの PPO の量と発光量

発光量の減衰率は  $\text{Ratio} = 99.4 \pm 0.1(\text{stat}) \pm 0.1(\text{sys})\%$  となる。

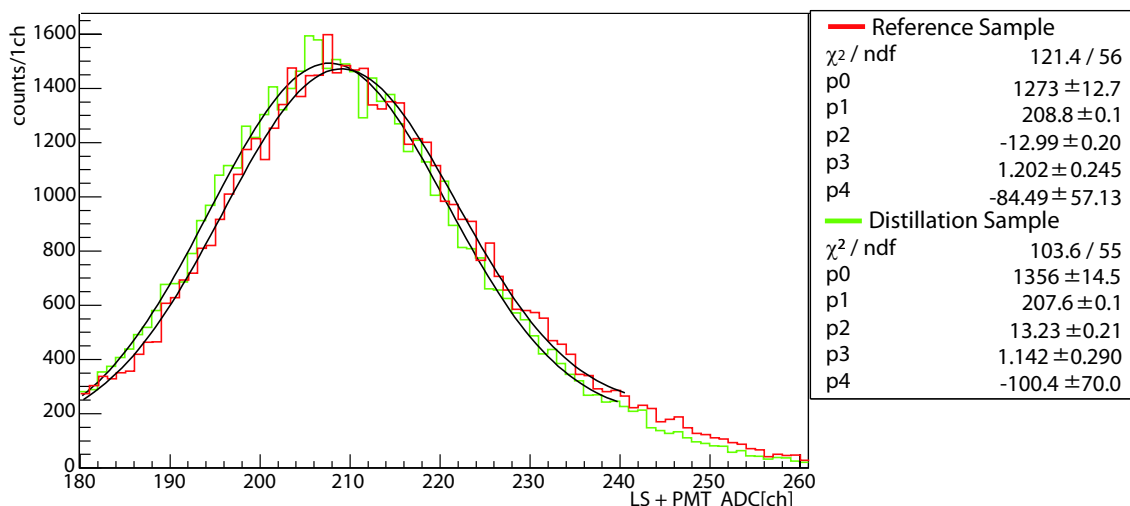


図 5.12: 液体シンチレーターを蒸留したときの発光量の変化：上図は蒸留前、下図は蒸留後

## 5.5 結論

液体シンチレーター全体の加熱による発光量の減衰評価実験において、15ppm 以内の範囲では、溶媒の蒸留温度において1%以内の減少に収まっている。これから、溶媒での変質は低溶存酸素下で行うことで防げることがわかった。また 15ppm という値は現在の KamLAND の溶存酸素濃度 (9~15ppm) と比較して、実現可能な値であり、今後の実際の KamLAND の液体シンチレーター純化において現在の溶存酸素濃度で問題ないといえる。また PPO の純物質の蒸留において蒸留前後の比が  $\text{Ratio} = 100.4 \pm 0.2\%$  となり、発光量の減少は確認されなかった。液体シンチレーターの蒸留において蒸留前後の比が  $\text{Ratio} = 99.4 \pm 0.1 \pm 0.1\%$  となり、発光量はほぼ維持できたといえる。

5.2 節の「評価方法」で挙げた 4 つ実験において、発光量は蒸留前後で 1% 以内となり維持できている。このことから、5.1 の「発光過程」で示した、溶媒、溶質、またその分子間での発光過程のどの過程においても、蒸留による影響は受けていないことを示せた。

## 5.6 長期安定性

この節では、蒸留処理された液体シンチレーターが長期にわたって安定してその性能を維持できるかを述べる。KamLAND では蒸留後、少なくとも 5 年は液体シンチレーターの性能を、純化前と同等の性能に維持する必要がある。これまでの実験結果において、蒸留直後の液体シンチレーターの発光量を測定し、蒸留前後において維持できていることは確認した。蒸留操作による温度の影響が現れないかを、蒸留したサンプルの加速実験を行うことにより調べる。

### 5.6.1 実験方法

実際の KamLAND での液体シンチレーターの蒸留操作は全成分にわたって行われるため、今回の長期安定性の実験においても LS 全成分を連続的に蒸留し、得た各成分から KamLAND の構成

比に配合したサンプルを用意しテストした。一般に反応速度は温度により強い影響を受け、反応の種類によって異なるが、温度が 10 度上昇すると反応速度は 2~3 倍程度に増大する。これを表したのがアレニウスの式で、反応速度定数  $k$  の対数と絶対温度の逆数  $1/T$  との間に一次線形関係が成り立つことを示している。これは化学反応が一定の値以上のエネルギーを持つ分子により引き起こされると仮定し、温度が上昇すると高いエネルギーを持つ分子が指数的に増加する為である。

$$\ln k = -\frac{B}{T} + C \quad (5.4)$$

$$k = Ae^{-\frac{E_a}{RT}} \quad (5.5)$$

$$k : \text{反応速度係数} \quad (5.6)$$

$E_a$  : 活性化エネルギー

$R$  : 気体定数

$T$  : 絶対温度

液体シンチレーターを使用する KamLAND の坑内での温度は通年ほぼ 15 度程度に保たれている。そのため加速実験においては、10 度で化学反応が約 2 倍加速されると考え、45 度に設定して 8 倍加速して実験を行うこととする。150 ml のガラスバイアルに 100ml を入れ、気層部と液体シンチレーター中の酸素を完全除去するため各サンプルにつき 1 時間の窒素パージを行う。パージ後、バイアルの瓶はシールテープとポリエチレンのラップで密閉したのち、チャック付の遮光した袋に窒素と共に封じて、恒温槽に安置した。

## 5.6.2 結果

測定は、1 週間後と 3 週間後に行った。結果は図 5.13 に示した。液体シンチレーターの変色等は 1 回目、2 回目の測定共に見られなかった。KamLAND の液体シンチレーターの発光量と比較すると、Ratio = 100.4±0.1% となり、1ヶ月（8 倍に加速されるため 8ヶ月に相当）後においても維持しているといえる。KamLAND の目標とする液体シンチレーターの安定期間は 5 年から 10 年にわたるため、引き続き実験の必要がある。

## 5.7 まとめ—液体シンチレーターの評価

これまでの実験で蒸留後の発光特性は、蒸留前の KamLAND のものと変わらず維持できていることが示せた。また蒸留実験から得られた最大の発光量の落ちを仮定しても、KamLAND のエネルギー分解能などへの影響は 1%程度となっている。しかし液体シンチレーターの性能の評価においては透過度という重要なパラメーターがある。液体シンチレーターでの光の強度は、発光スペクトル、透過度の積を波長領域で積分した形により表され、透過度の維持がなければ液体シンチレーターの性能が維持できたことにはならない。現在、透過度の研究も並行して進められており、加熱後の液体シンチレーターの透過度は維持しているという結果が出されている。その実験の方法と結果を簡単にまとめ、これまで述べた発光量と合わせて液体シンチレーターの性能を評価する。

実験方法は図 5.4 を用いて 110°C にて 2 時間加熱した前後での透過度を測定した。図 5.14 にその結果を示した。KamLAND で発光に関わる 400[nm] 以下の領域の透過度は維持できている。

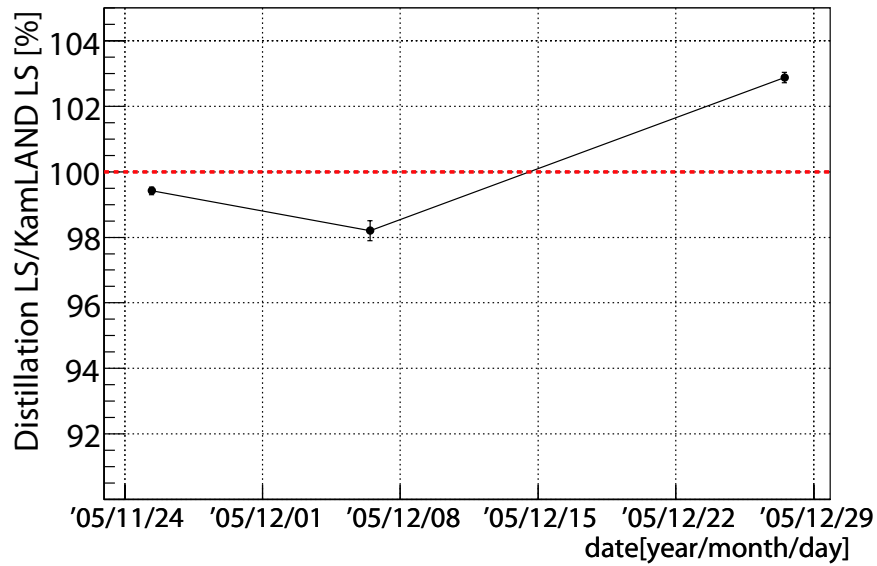


図 5.13: 蒸留試料の発光量長期安定性：横軸は測定した日、縦軸は蒸留後のサンプル/KamLAND の液体シンチレーター

装置は図 5.15 に示した。装置ではタングステンランプの光が 1cm と 10cm のセルを通った後の光の強度を測定し、その差から透過度を求める。

液体シンチレーターの蒸留において透過度が維持していること早急に調べる必要があるが、現段階ではこの結果と発光量での結果を合わせ、KamLAND の液体シンチレーターは純化後も透過度  $\lambda = 10[\text{m}]$ 、発光量  $500\text{p.e./MeV}(17''+20'')$  という現在の KamLAND の性能を維持できているといえる。

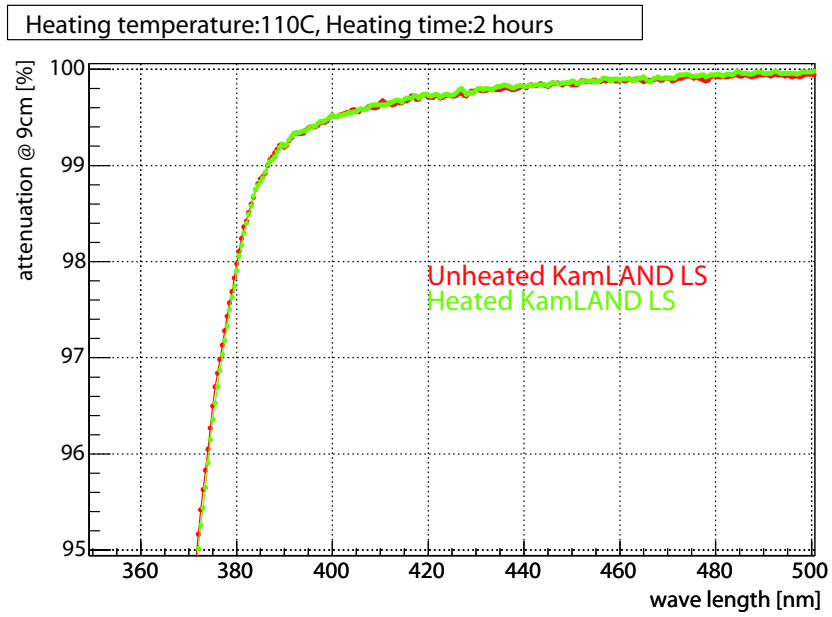


図 5.14: 加熱前と後の透過度%/9cm の結果

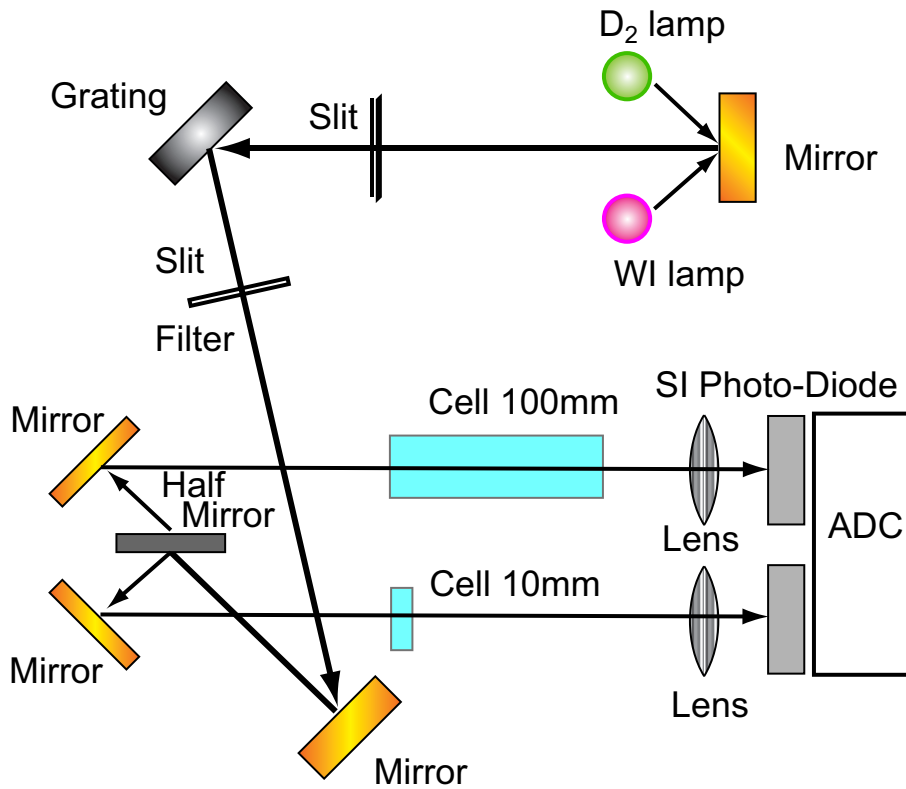


図 5.15: 吸光光度計 HITACHI U2000F : 装置の測定精度 0.1%



## 第6章 まとめと今後の課題

### 6.1 まとめ

これまでのところで大きく二つのテーマで KamLAND の液体シンチレーターの純化について述べた。まず蒸留法による鉛除去の研究についてまとめる。純物質において液体シンチレーターの構成成分全てに対し蒸留を行い、高い除去率が確認できた。また次期計画として、KamLAND の液体シンチレーターを混合物のまま純化する予定であることから、液体シンチレーターの蒸留が可能であるかは重要な課題であった。これについてはテーブルサイズの実験装置ではあるが、液体シンチレーターの連続した蒸留操作が可能であることを示した。液体シンチレーターの蒸留における除去率については、 $10^{-3}$  程度の除去率しか得ることができなかったが、これは有機鉛化合物の沸点が、液体シンチレーターの蒸留温度帯に存在しているためと考えられる。本研究において、混合物の蒸留温度と除去率の関係を詳細に調べることにより、混合物の蒸留においても、温度の精密制御によって、純物質と同じ程度の除去率を達成できる可能性を示した。

次に発光特性の性能評価についてまとめる。発光量は発光物質である PPO のみでの蒸留においても、液体シンチレーターの蒸留においても減少は見られなかった。このことから液体シンチレーターの溶媒、溶質の両方において発光過程における性能は損なわれておらず、発光過程全てにおいて維持できたといえる。また実験での最大の減少率を考えたとしても、KamLAND に対しては 1% の影響に留まり、性能は維持できることが示せた。

序章で述べたように、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{40}\text{K}$  からのバックグラウンドの削減はすでに確認されており、この結果と合わせると KamLAND での太陽ニュートリノ観測が可能となるという実験データが得られた図 6.1。

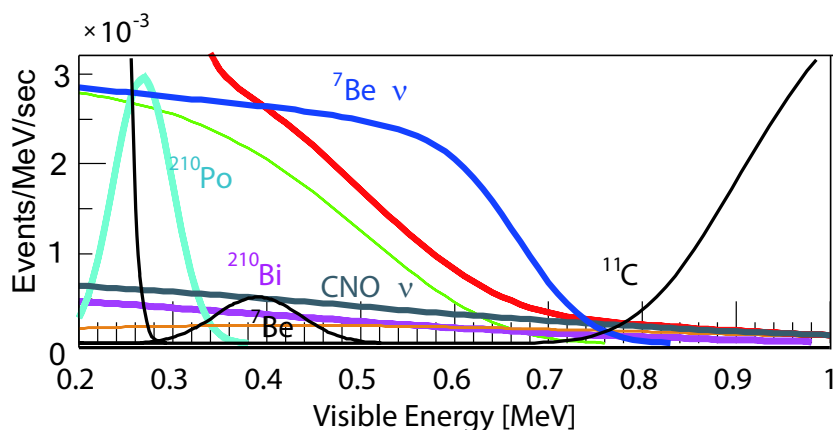


図 6.1: 実験より得られた除去率から得られた KamLAND 低エネルギー領域のスペクトル

## 6.2 今後の課題

ここでは、本実験においてさらに研究が必要なことをまとめる。

### 6.2.1 放射性鉛の除去

- 1 液体シンチレーターの複数回蒸留による、最大除去率の確認  
KamLANDでの除去率を大規模装置にて見積もり、問題点がないかを確認する必要がある。
- 2 液体シンチレーター蒸留温度帯での放射性鉛の確認  
混合蒸留での除去効率低下の原因究明は除去効率の改善だけでなく、もし温度依存が確実に見られるのならば、実機において温度による蒸留液の取出しなどを行う必要があり、設計、オペレーションを左右する重大な問題である。
- 3 大規模蒸留装置での効率的な蒸留のための還流比 (reflux ratio) と理論段の研究

### 6.2.2 液体シンチレーターの性能評価

- 1 長期安定性の確認  
長期安定性実験については現段階では8ヶ月を確認したが、太陽ニュートリノ観測は少なくとも5年純化後は実験終了時まで維持する必要があるためさらに長期安定性実験を続ける必要がある。
- 2 再発光の測定  
KamLANDでは一度発光した光が、溶質に吸収され再度発光する光を観測している。そのため蒸留後のPPOに対して吸収再発光が起きるかを調べる必要がある。

## 6.3 純化後のKamLANDへの影響

純化による放射性不純物の削減は、地球内部起源ニュートリノや原子炉ニュートリノの観測に対しても大きな影響をもたらす。双方ともエネルギー閾値は現在でも十分であるが、放射性不純物が減ることによって、偶発同時計数バックグラウンドが大幅に削減され、さらに解析条件の緩和、有効体積の増加といったことも可能になる。また遅延同時計測において、 $^{210}\text{Po}$ の $\alpha$ 崩壊により引き起こされる $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ 反応によるバックグラウンドが現在問題となっているが、今回の純化により、このバックグラウンドの削減も期待できる。特にこのバックグラウンドの影響が大きい地球内部起源ニュートリノは、純化による放射性不純物の4桁の削減を想定した場合、 $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ 反応によるバックグラウンドが無視できるレベルとなり、解析条件の緩和、有効体積の増加と合わせると、誤差を23%削減できると見込まれる [23]。また原子炉ニュートリノの解析においても $^{210}\text{Po}$ からのバックグラウンドに起因する不定性の影響を受けているが、純化による $^{13}\text{C}(\alpha, n)^{16}\text{O}$ バックグラウンドの削減により、この不定性を排除することができる。

このように純化後のKamLANDにおいては、pp連鎖の初期反応で寄与の大きい $^7\text{Be}$ ニュートリノ、 $^8\text{B}$ ニュートリノのMSW効果の検証、さらにはCNOサイクルからのニュートリノの検出

という太陽からのニュートリノの物理だけでなく、今までの地球や、原子炉からの反ニュートリノの実験の精度も良くなることが期待されている。

## 6.4 将来計画：蒸留設備

現在 KamLAND では来年の純化装置建設に向け準備中である。ここでは現段階で液体シンチレーターへの純化に向けて建設が予定されている純化装置、特に蒸留装置について述べる [24]。またこれからの予定についてもまとめる。

### 6.4.1 純化装置

現在、KamLAND での太陽ニュートリノ観測に向けた純化装置の基礎研究は終わりに近づいており、今年の終わりごろから徐々に建設が始まる予定である。図 6.2 は現段階での KamLAND の液体シンチレーター純化設備の全体像である。装置は大きく分けて 3 つある。

- 蒸留装置  
 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、の除去を行う。詳細は後で述べる。
- 窒素供給設備  
KamLAND 検出器、蒸留装置、窒素パージ装置、 $^{222}\text{Rn}^{85}\text{Kr}$  検出器に窒素を供給する設備である。
- 窒素パージ装置  
液体シンチレーター中の希ガスである  $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{222}\text{Rn}$ 、Ar の除去を行う。今までの窒素パージ塔は液体シンチレーター中の酸素と水分を除去することが目的であり、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{222}\text{Rn}$  といった希ガスは除去できなかった。時期純化設備で建設される新しい窒素パージ塔では、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{222}\text{Rn}$  といった希ガスの除去を目指しており、液体シンチレーターを霧状にした状態で窒素に通すことにより除去効率を上げる計画である。

また純化された液体シンチレーターを検査する目的で 2 つの検出器がある。この検出器により、純化が十分でない液体シンチレーターや  $^{222}\text{Rn}$ 、 $^{85}\text{Kr}$  が混入した液体シンチレーターを KamLAND に投入することなく再純化を行うことができる。

- $^{222}\text{Rn}$  モニター  
純化後の  $^{222}\text{Rn}$  を測定し、蒸留により  $^{210}\text{Pb}$  が除去できていることを確認する。また  $^{222}\text{Rn}$  のレートから純化過程でのリークがないかをモニターする。この装置に対する要求は KamLAND において  $^{210}\text{Pb}$  の純化の目標値である  $1[\mu\text{Bq}/\text{m}^3]$  を検出することである。 $^{222}\text{Rn}$  に換算すると  $1[\text{mBq}]$  の検出が可能であることが要求される。装置はまだ開発段階だが、 $1\text{m}^3$  程度の大きさのアクリル容器に PMT を取り付けて、液体シンチレーターを直接測定することにより検査を行う予定となっている。
- $^{85}\text{Kr}$  モニター  
純化後の  $^{85}\text{Kr}$  を測定し、蒸留により  $^{85}\text{Kr}$  が除去できていることを確認する。また  $^{85}\text{Kr}$  を

測定することにより、純化過程でのリークがないかをモニターする。この装置についても KamLAND での純化の目標値である  $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  の検出が要求されている。この装置についても開発段階であるが、結晶性の無機多孔質材料であるゼオライトに  $^{85}\text{Kr}$  を吸着し、濃縮を行う。 $^{85}\text{Kr}$  の測定には質量分析装置を用いる。

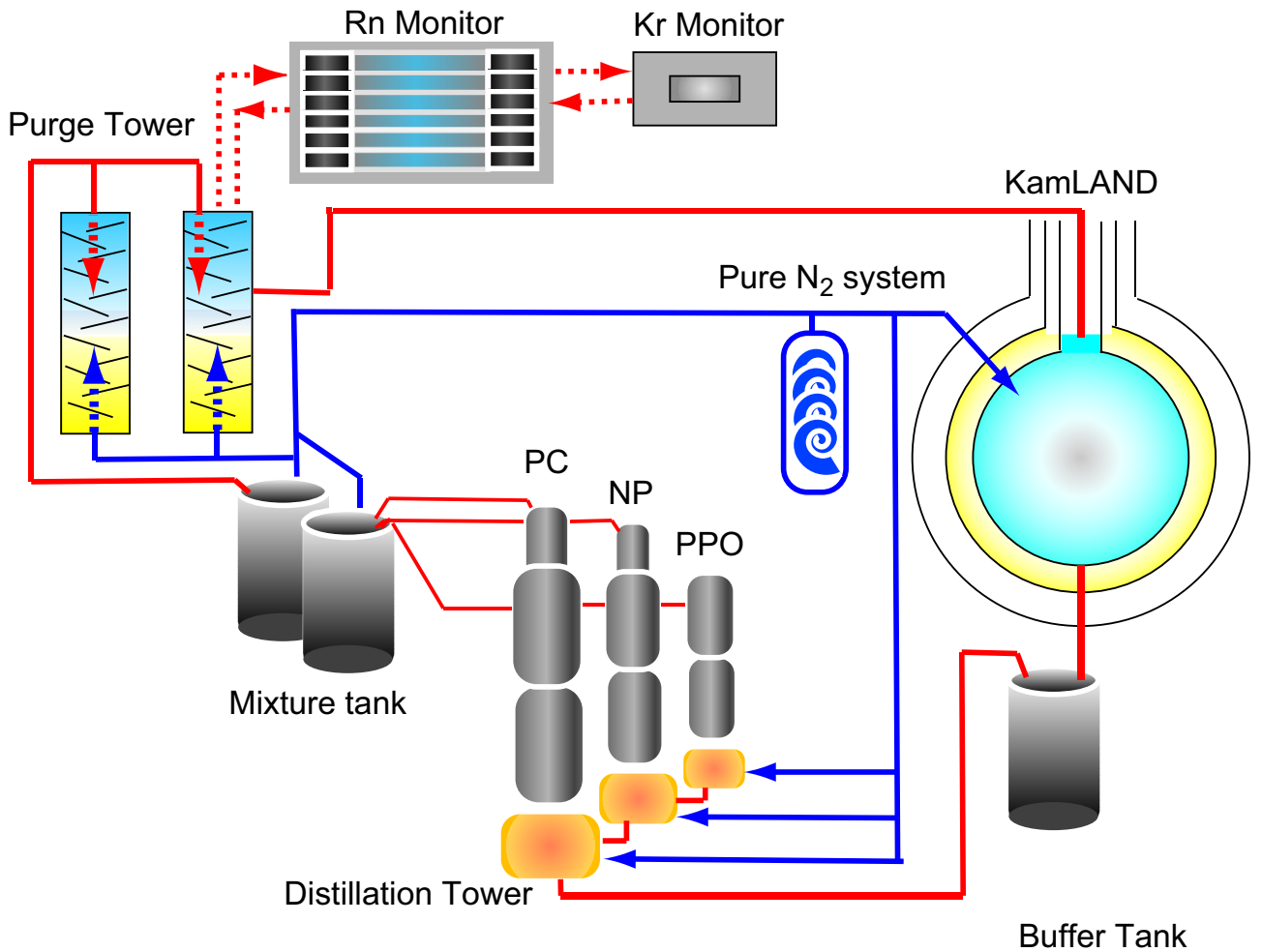


図 6.2: KamLAND の液体シンチレーターの純化設備：赤線は液体シンチレーターの流れを表し、青い線は窒素の流れを表す

### 6.4.2 蒸留装置

蒸留装置について述べる。蒸留装置は各物質の沸点の違いや、構成比の変化による蒸留後の液体シンチレーターの作成を考慮して、各成分ごとに蒸留を行う。そのため蒸留塔3塔建設される予定である(図6.3)。各蒸留塔での液体シンチレーターの成分比については表6.1にまとめた。

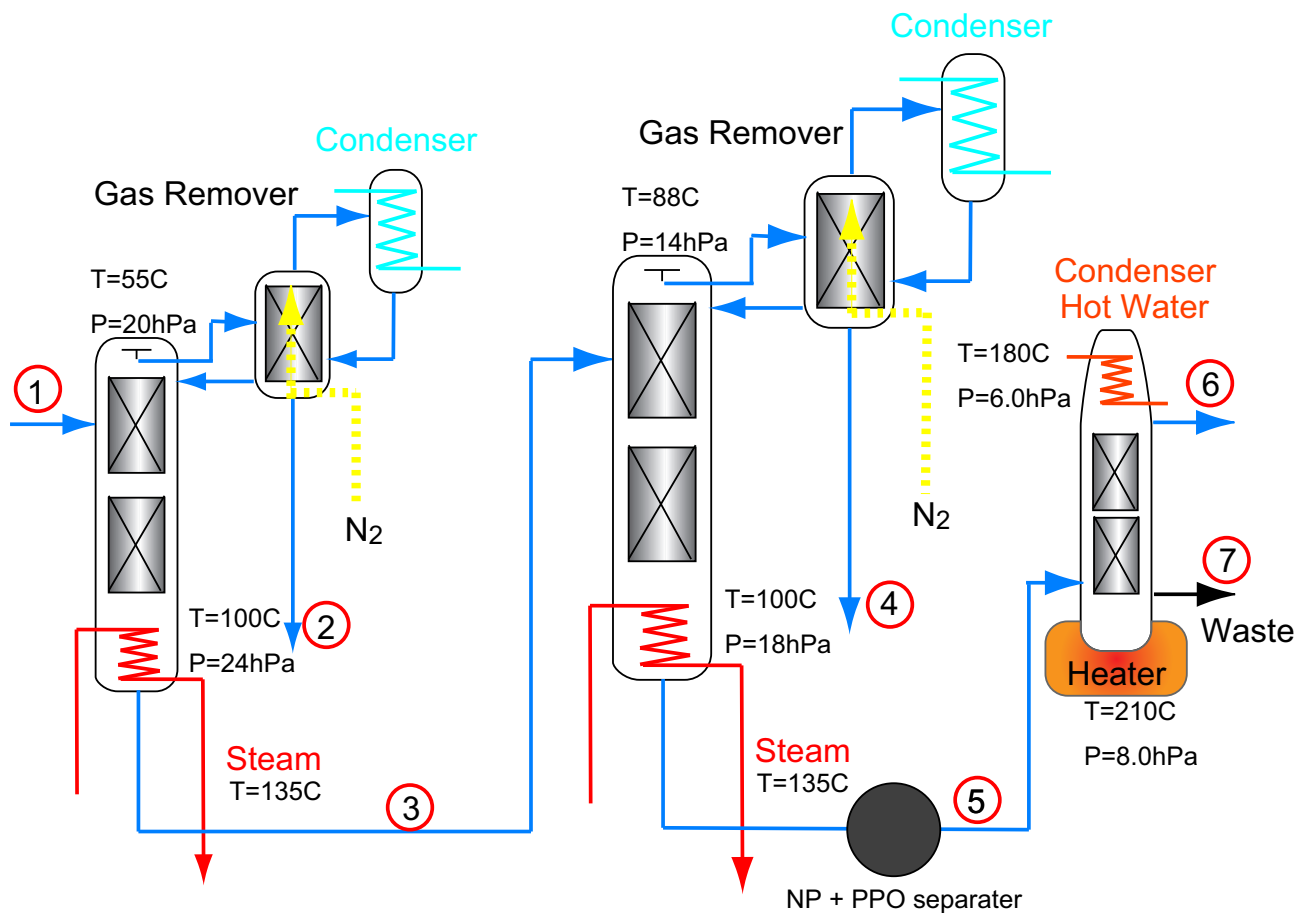


図 6.3: KamLAND の液体シンチレーターの蒸留塔：青線は液体シンチレーターの流れを表す

蒸留塔	投入液 [mol%]			蒸留液 [mol%]		
	PC	NP	PPO	PC	NP	PPO
PC 蒸留塔	26.13	73.76	0.107	97.67	2.00	0.34
NP 蒸留塔	3.45	96.46	0.19	3.5	96.3	0.21
NP-PPO 分離装置	-	90.2	9.8	PPO 蒸留塔投入液		
PPO 蒸留塔	-	9.2	90.8	-	1.33	98.67

表 6.1: 小規模ガラス蒸留装置

### 6.4.3 スケジュール

現在の KamLAND は実機に向けての設計内容を決定する最終段階にあり、図 6.4 のようなスケジュールが予定されている。現在の予定では、来年の 9 月蒸留装置も含めた全ての装置が完成し、純化を開始することになっている。一年間の純化を想定した場合、2008 年の後半には待望の太陽ニュートリノ観測が行えると期待している。

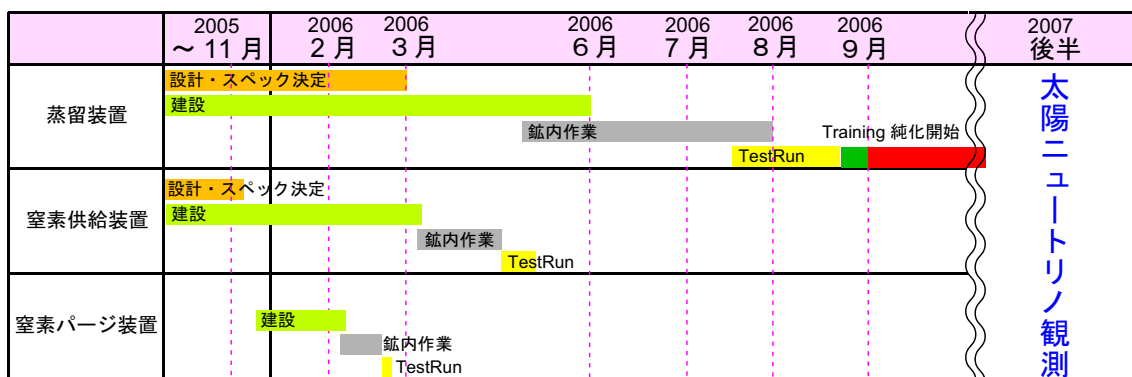


図 6.4: KamLAND の液体シンチレーターの純化設備の建設スケジュール

## 付録A バブリング装置

バブリング装置のトリウム線源はアラバマ大学と東北大学金属材料研究所の提供を受けた。アラバマ大学の装置と、金属材料研究所の  $\alpha$  放射体実験室に設置されている装置について書く。アラバマ大学提供の装置の構成は図 A.1 に示した。線源の強さは 2002 年 7 月 31 日にキャリブレーションされた値を用いて次のように求めた。

$$N_{228\text{Th}} = 76.41 \exp(\lambda_{228\text{Th}} \times \delta t)(1 \pm 4\%) \quad (\text{A.1})$$

$$N_{220\text{Rn}} = (N_{228\text{Th}}/0.995) \left( \frac{\lambda_{220\text{Rn}}}{v + f} \right) \quad (\text{A.2})$$

$$N_{228\text{Th}} = {}^{228}\text{Th} \text{ のカウントレート [kBq]} = 162.2(1 \pm 4\%) [\text{kBq}]$$

$$N_{220\text{Th}} = {}^{220}\text{Rn} \text{ のカウントレート [kBq/ml]}$$

$$\lambda_{228\text{Th}} = \frac{\ln 2}{T_{\frac{1}{2}}} = \frac{0.693}{1.913} = 0.362 [\text{y}^{-1}]$$

$$\lambda_{220\text{Rn}} = \frac{0.693}{55.6/60} = 0.747 [\text{min}^{-1}]$$

$$\delta t = 2.08 [\text{y}] (\text{実験を行ったのは 2004 年 9 月})$$

$$v = 106 [\text{ml}] (\text{Source Volume})$$

$$f = 3500 [\text{ml/min}] (\text{Flow Rate})$$

(A.3)

$N_{220\text{Rn}} = 33.7 [\text{Bq/ml}]$  の強度でバブリングを行った。およそ 500ml のサンプルを 10 時間バブリングした時のカウントレートは 100Bq/40ml 程度となった。

金属材料研究所の  $\alpha$  放射体実験室に設置されている装置は図 A.2 のような構成をしており、表 A.1 に示した酸化トリウムを使用している。酸化トリウムに窒素を通して、その窒素により Rn を押し出しサンプル溶液にバブリングする。これにより Rn の娘核である  $^{212}\text{Pb}$  が蓄積される。窒素は 100ml/min で流し、約 5 時間 ~ 10 時間のバブリングを行った。およそ 300ml のサンプルを 10 時間バブリングした時のカウントレートは 10Bq/40ml 程度となった。

線源パッチ名	ThO <sup>2</sup> -SI
核燃料種	Th
元素重量	147.9g
化合物重量	168.3g

表 A.1: Th 線源:金属材料研究所  $\alpha$  放射体実験室において使用しているトリウム線源

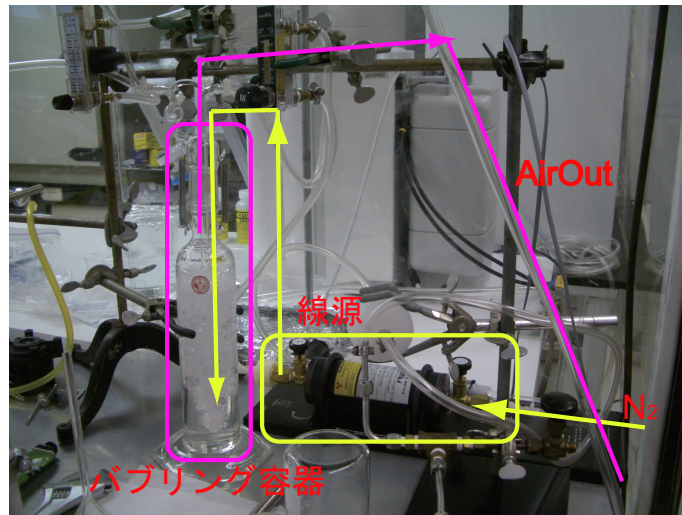


図 A.1: アラバマ大学のバブリング装置

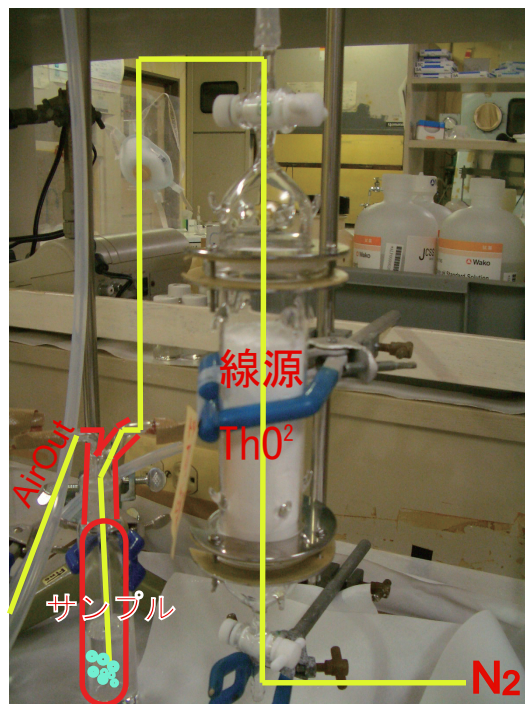


図 A.2: 金属材料研究所のバブリング装置



#### A.0.4 PPO 用バブリング装置

酸化トリウム ( $\text{ThO}_2$ ) バブリングは金属材料研究所の  $\alpha$  放射体実験室にて行った。装置は図 A.3 に示す。PPO は固体のため、バブリングを行うには液体にする必要がある。液体にする際、PPO の劣化を防ぐため、気密性のある O リングを用いたガラス容器に PPO を入れ、事前に窒素パージを 15 分行い、装置や PPO 内部にある酸素を除去する。その後、ヒーターの電源を入れ 70 度以上にして PPO を液化させる。酸化トリウムのバブリング時間は 30 ~ 60 分である。このバブリングにより、 $^{212}\text{Pb}$  が PPO 内部に蓄積する。バブリング後は冷却して、固体になったものを取り出す。この装置では 100 ~ 150[g] の PPO を一度にバブリングできる。100g を 1 時間バブリングした時のカウントレートは 20Bq/15g 程度となった。

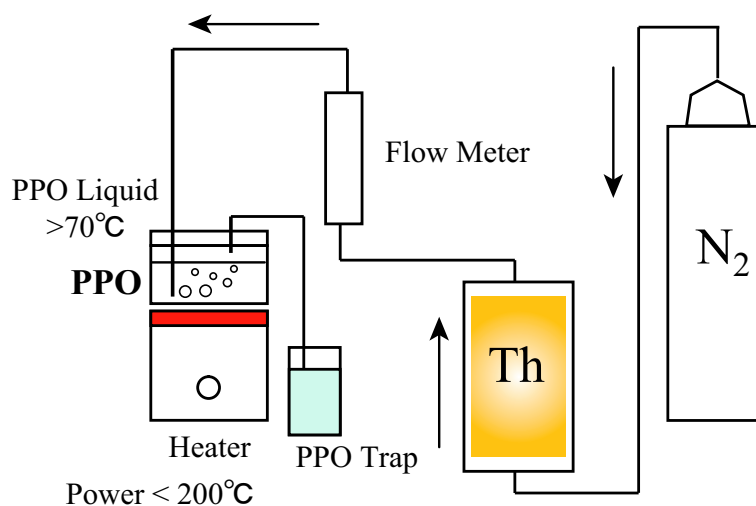


図 A.3: PPO バブリング装置

実験に用いた U、Th 系列の崩壊図を記す。

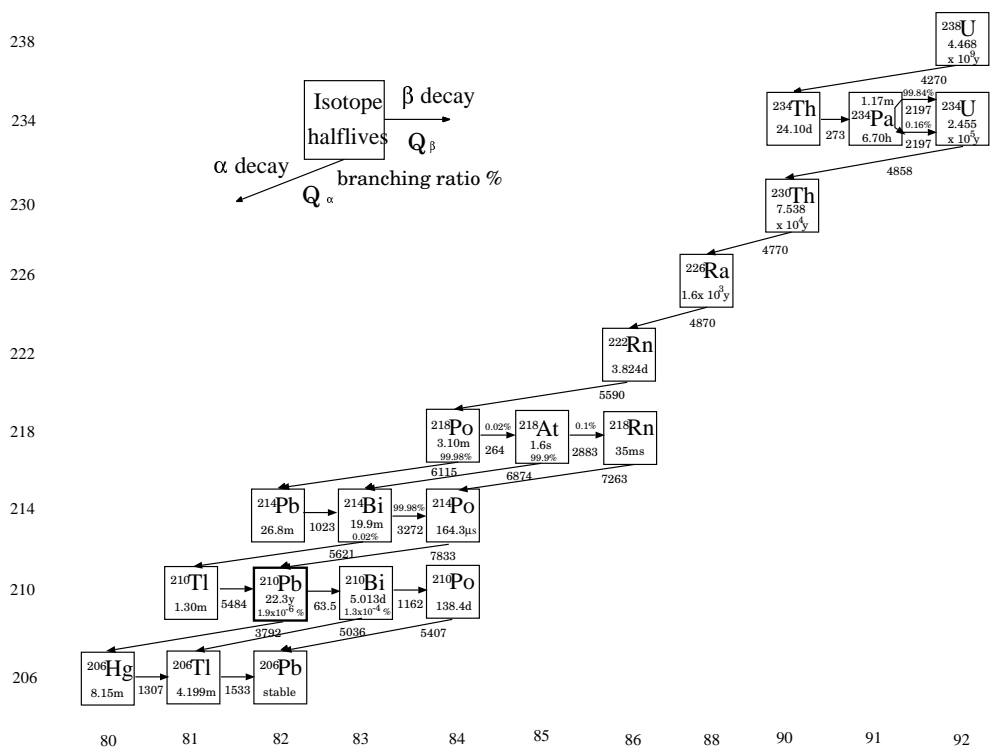
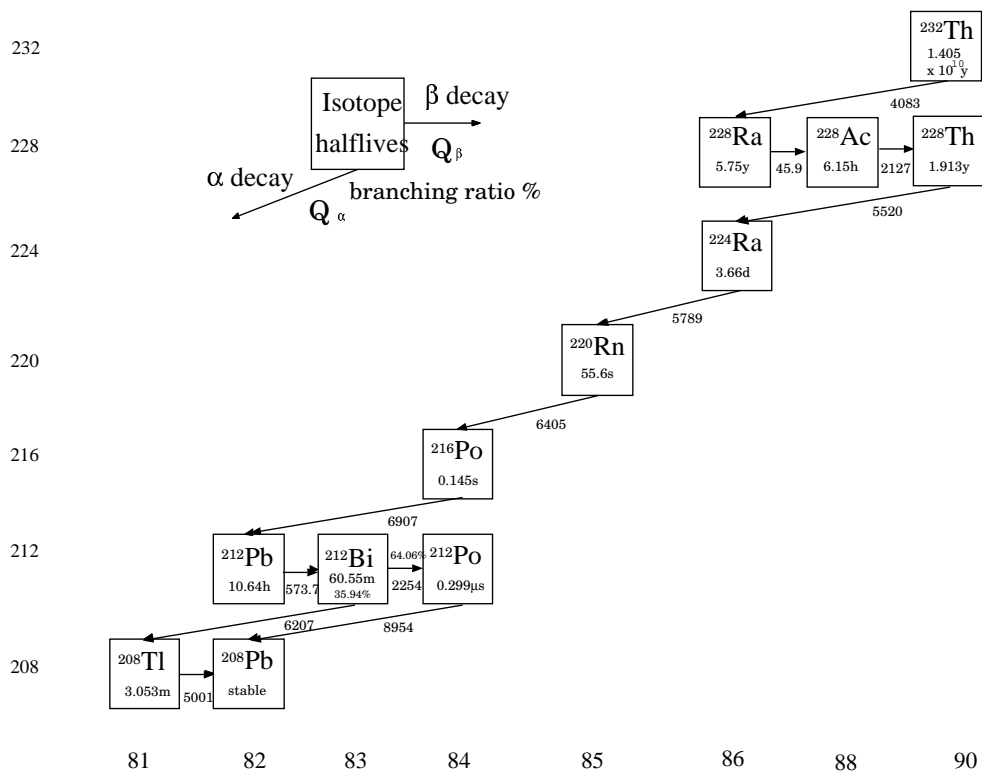


图 A.4: U 系列



☒ A.5: Th 系列

## 付 録 B    クエンチング除去方法

ここではサンプルの発光量を正しく図る上で、深刻な問題となるクエンチングについて述べる。クエンチングには様々な種類（化学クエンチング、色クエンチング、濃度クエンチング、etc）があるが、今回の実験において、発光量の測定時に考慮すべきクエンチングは酸素クエンチングである。発光量の大小を異なったサンプルで比較する場合、サンプルの溶存酸素量によって発光量が変わらないように、酸素クエンチングを取り除くことは重要である。濃度クエンチングも発光量測定に影響を及ぼすが、PPO の量に依存するため除去することは難しい。そのため濃度クエンチングについては、濃度による発光量の変化を調べ誤差として取り扱う。化学クエンチング、色クエンチングは加熱、蒸留操作による液体シンチレーターの変質により生じる可能性がある。

### 酸素クエンチング

酸素クエンチングは溶液中に存在する溶存酸素に起因する。溶存酸素とは液相中に溶解している分子状酸素のことを指す。酸素クエンチングは放射線エネルギーによって溶媒が励起し、さらに溶媒の励起エネルギーが溶質に移行するまでの過程で起こるクエンチングである。酸素分子は強い電子受容性を持つため、放射線エネルギーで励起された励起第一重項状態の溶媒分子とエキシプレックスを形成しやすい。エキシプレックスとは基底状態の分子と励起状態の分子が異なる 2 分子により会合してできた 2 量体のことを言う。エキシプレックスが生じると下記のようにクエンチングを起こす。 $^1M$  は一重項状態の溶媒分子、 $^3O_2$  は三重項状態の酸素分子である。

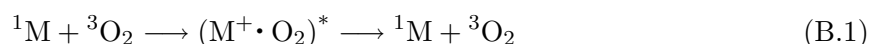


図 B のように酸素クエンチングが起こると、発光量が実際よりも小さく見えるため次のようにして酸素クエンチングを取り除いた。酸素を液中から除去するには、15ml の液体シンチレーターに対して 3 分間の窒素パージで十分除去できる [?]。そのため、今回は測定前のサンプル 60ml に対して 15 分程度の窒素パージを行った。パージ後サンプル瓶の蓋を密閉して酸素が混入しないようにする。測定後、溶存酸素測定計で内部の液の酸素量を測定する。これは測定中に酸素がリークしてクエンチングが起きていないかを確認するためである。溶存酸素測定計の仕様は表 B のにまとめた。図 B は NP を窒素バブリングして 0[ppm] にしてから大気中に放置して溶存酸素を測定したものである。120 分後に溶液の溶存酸素は 68[ppm] に達し、大気中の酸素 (20%) と平衡状態に達した。この値を大気下での最大溶存酸素濃度とおく。

測定後の溶液の透過度が劣化する傾向がある。そのため測定溶液は使用后他の測定には用いないようにした。

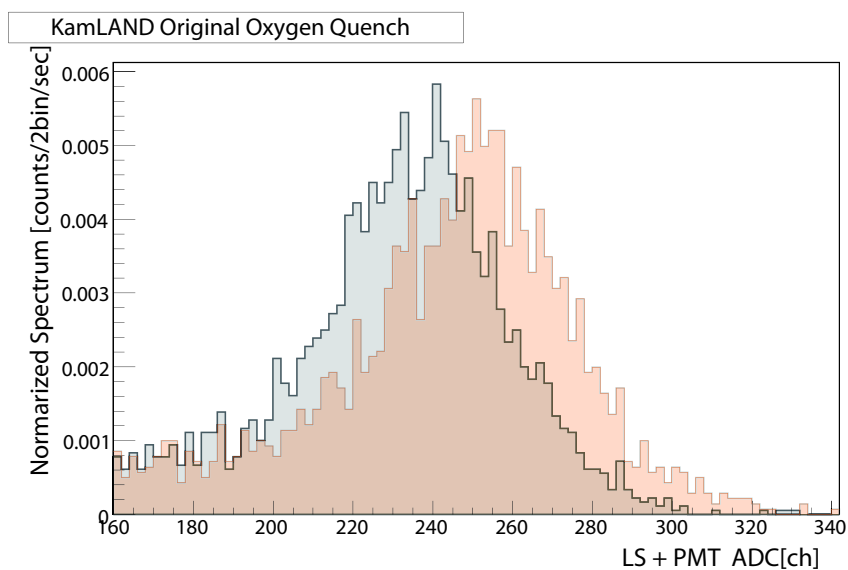


図 B.1: 酸素クエンチング : 水色のグラフは酸素クエンチングが起きたサンプル、赤色のグラフが窒素バブリングを 15 分して酸素を取り除いたサンプル

セントラル科学株式会社	UC-12-SOL 型 (有機溶媒用)
電極	ポーロラ方式 DO 電極
測定範囲 DO	0 ~ 20.0mg/L
分解能	0.1mg/L
使用電極 カソード	白金
使用電極 アノード	銀
隔膜	FEP 厚さ 0.025mm

表 B.1: 溶存酸素メーターの仕様

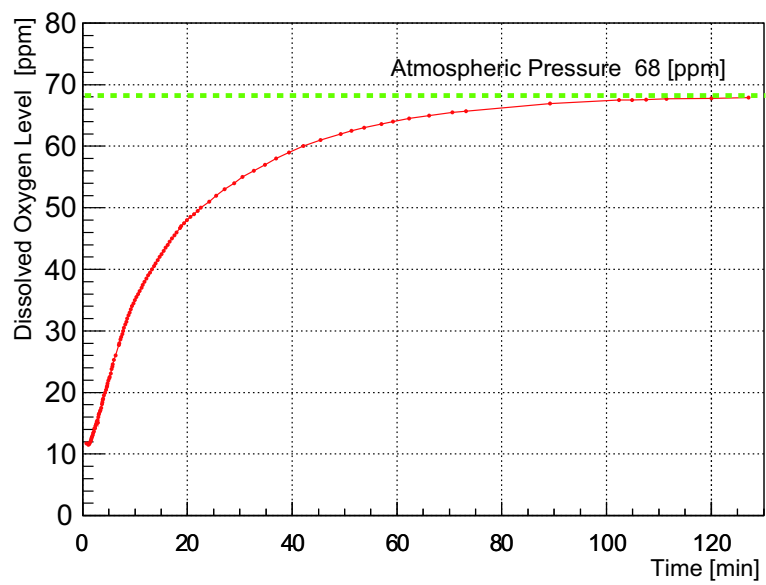


図 B.2: 溶存酸素の緩和曲線

## 付録C 有機鉛化合物

有機金属化合物とは少なくとも1つの炭素-金属結合を持つ化合物のことである。有機金属化合物に関する研究は1760年頃から始まり、その工業的な価値から非常に活発に研究されている。有機鉛化合物の化学は、その有機金属化学の歴史の中でも特に良く研究されている分野である。まずはじめに、有機金属化合物の化学的性質について述べ、その後有機鉛化合物について詳しく述べる。有機金属化合物は一般的に反応性にとむ物質で、熱に不安定である。また物質によっては空气中で自然発火するものもある。

### 1 熱に対する安定性

同じ族の元素であれば、原子量が大きい元素の有機化合物ほど熱分解しやすい。同じ周期の元素については、周期表の左にある有機化合物ほど不安定である。

### 2 自然発火性

多くの有機金属化合物は空気に触れると発火する。特に電子受体元素のあるII、III族の化合物やアルカリ金属、アルカリ土金属のアルキル化合物での反応が激しい。

鉛は四価以外に二価の原子価状態をとって有機金属化合物をつくることができる。図C.1の構造(a)は二価の共有結合の状態にある鉛化合物である。この状態では原子価かくに6個の電子しか持っていないので、別に2個の電子を容易に収容して安定なオクテットを作ることができる。また結合していない一対の孤立電子がある。二価の鉛化合物は強く着色しているが、非常に不安定で、わずかな化合物しか知られていない。また空气中で速やかに酸化されて、原子価4の鉛化合物になる。二価の鉛化合物が金属鉛を遊離し $R_3PbPbR_3$ を生じ、最終的に四価の鉛化合物になる過程を表したのが、式C.1、C.2である。



$R$  は同種または異種の有機原子団を表す。

(b)は四価の鉛化合物である。(b)は(a)に比べ二つも共有結合が多く、また孤立電子がない。そのため鉛は安定なオクテットを形成している。このことから、最も安定な有機鉛化合物は四価の鉛( $R_4Pb$ )の誘導体である。

四価の鉛は炭素と同様、正四面体構造をとることが、多くの分子構造論から支持されており、これをテトラアルキル鉛と呼ぶ。

次にテトラアルキル鉛の化学的性質について述べる。

### 1 イオンの切断反応

テトラアルキル鉛はハロゲンと反応する。この反応はイオンの切断といい、反応温度や濃度

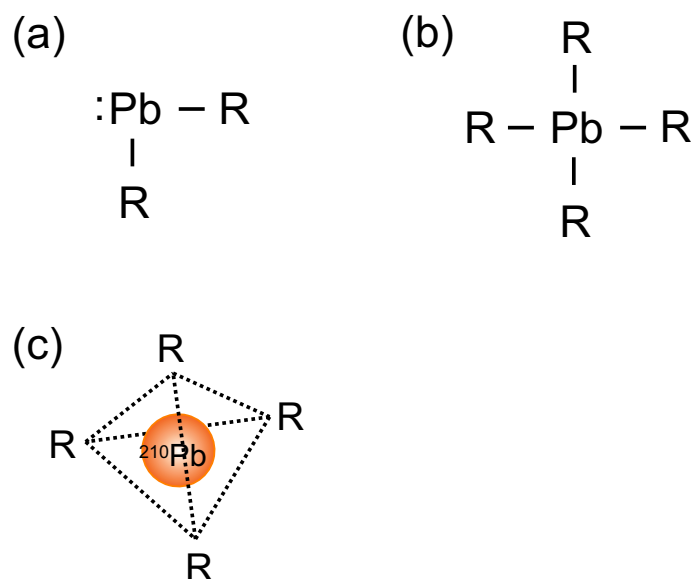


図 C.1: 有機鉛化合物の構造 : (a) 二価の鉛化合物 (b) 四価の鉛化合物 (c) 四価の鉛化合物の正四面体構造

に従って、式 C.3、C.4 反応を行う。



$R$  は同種または異種の有機原子団を、 $X$  はハロゲンを表す。

(C.5)

このイオンの切断反応において、第三の  $R$  を切断して  $\text{RPbX}_3$  を作ることはできない。2 当量以上のハロゲンを用いると塩化鉛とハロゲン化アルキルが生成される。このようにテトラアルキル鉛の一部がハロゲンに置き換わることにより、極性を持たない状態から分子中に電気的な偏りができる。このように電気的な偏りができるならば、液液抽出法といった方法で分離除去することが可能である。

## 2 ラジカルの切断

有機金属化合物が熱に対する安定性が低いことは、はじめに述べた。ここでは特に有機鉛化合物について述べる。有機鉛化合物を熱分解すると有機遊離ラジカルを生成する。代表的な有機鉛化合物であるテトラメチル鉛は低圧、不活性ガスの下で熱分解し、遊離メチルラジカルを生じる。テトラエチル鉛も同様にアルキル遊離ラジカルである、エチルラジカルを生成する。

最後に液体シンチレーター中に存在する可能性のある有機鉛化合物を表にまとめた [19] [20]。C.1 は有機鉛化合物  $\text{PbR}_4$  において  $R$  がすべて同じもので、C.2 は有機鉛化合物  $\text{PbR}_4$  において  $R$  が全て同じでない化合物をまとめた。一般的に  $R$  がすべて同じものに対して、異なるものを持つ場合は、その融点が低く、有機溶媒に溶けやすく、熱的に不安定で反応にとむ。ここに記した有機



鉛化合物は、ごく一部であり、さらに複雑な構造をした有機鉛化合物もある。温度をコントロールした蒸留により、有機鉛化合物の存在する沸点帯を見つけることは可能であるが、その成分を特定するのは不可能である。液体シンチレーター中に存在する有機鉛化合物については、実際に成分を分離検出し確かめる必要がある。

物質名	化学式	沸点 [°C]	性質
テトラメチル鉛	$\text{Pb} - (\text{CH}_3)_4$	110 (13hPa)	有機溶媒に可溶、水に不溶：低圧の不活性ガス化中で加熱すると分解してメチルラジカルを形成
テトラエチル鉛	$\text{Pb} - (\text{C}_2\text{H}_5)_4$	83 (10hPa)	有機溶媒に可溶、水に不溶：室温で徐々に分解し 125~150°Cで急速に分解
テトラフェニル鉛	$\text{Pb} - (\text{C}_6\text{H}_5)_4$	240 (15~20hPa)	テトラアルキル化合物より熱に対して安定 270°C以上で分解し、ジフェニルと鉛になる
テトラシクロヘキシル鉛	$\text{Pb} - (\text{C}_6\text{H}_{11})_4$	-	熱ベンゼンには容易に解ける白色結晶 アルコールには難溶 130°C以上に加熱すると黄色になり 160°Cで黒変して鉛を遊離する 急速に加熱すると 225°Cで爆発

表 C.1: 有機鉛化合物  $\text{PbR}_4$  において R がすべて同じもの

物質名	化学式	沸点 [°C]
トリエチルメチル鉛	$(\text{CH}_3)_3\text{PbC}_2\text{H}_5$	29(10hPa)
ジメチルジエチル鉛	$(\text{CH}_3)_2\text{Pb}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	51(10hPa)

表 C.2: 有機鉛化合物  $\text{PbR}_4$  において R がすべて同じでないもの

## 関連図書

- [1] J.N.Bahcall, Neutrino Astrophysics, Cambridge University Press
- [2] <http://www.mpi-hd.mpg.de/nuastro/galex.html>
- [3] J.B.Benziger *et al.* *Nucl.Phys. A* **278**, 417(1998)
- [4] 竹内 慎、東北大学理学研究科修士論文 (平成 17)
- [5] J.N.Bahcall and Carlos Peña-Garay, *New Journal Of Physics* **6**. 63(2004)
- [6] J.N.Bahcall and M.H.Pinsonneault, *Phys.Rev.Lett.* **92**, 121301(2004)
- [7] J.N.Bahcall, <http://www.sns.ias.edu/jnb/>
- [8] <http://csep10.phys.utk.edu/astr162/lect/index.html>
- [9] <http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino/>
- [10] K.Eguchi *et al.*(KamLAND Collaboration),*Phys.Rev.Lett.* **90** (2002) 011301
- [11] T.Araki *et al.*(KamLAND Collaboration),hep-ex 0406035v3, (2004)
- [12] Itaru Shimizu KamLAND Collaboration Meeting(2005)
- [13] Collection of Radio Activity Measurements KamLAND Collaboration
- [14] 市村 晃一 東北大学理学研究科修士論文 (平成 16)
- [15] T.Hagner *et al.*, *AstroPhys* **14** ,22-47(2000)
- [16] 小関 陽太郎 東北大学理学研究科修士論文 (平成 15)
- [17] 日本化学会編 実験科学講座 基礎編 丸善株式会社
- [18] 緒方 章ほか 化学実験操作法 南江堂
- [19] R. W. Leeper *et al.*, *ChemRecs* **54** ,101(1954)
- [20] 小竹 無二雄監修 大有機化学 18 朝倉書店
- [21] 石河 寛昭 液体シンチレーション測定法 南山堂
- [22] Itaru Shimizu Tohoku University Doctor Thesis(2005)

[23] Sanshiro Enomoto Tohoku University Doctor Thesis(2005)

[24] 放射性重元素除去装置 仕様計画書

## 謝辞

本研究をまとめるに当たり、多くの方々のご指導、ご協力を頂きました。この場を借りてお礼申し上げます。KamLAND 実験に参加したことで、様々なことを学ぶことができました。まず始めに KamLAND 実験に参加する機会を下さった鈴木厚人先生に感謝致します。そして指導教官である井上邦雄先生には、実験に対して多くの助言を頂き、また本論文をまとめるに当たって丁寧な指導を頂きました。ありがとうございました。

白井淳平先生には実験に当たっての助言だけでなく、線源の作成や実験を行う際の安全管理等の指導して頂きました。末包文彦先生には本論文をまとめるに当たり、KamLAND 建設時の実験のデータを提供して頂きました。三井唯夫先生には液体シンチレーターの性質に関することなど、多くの助言を頂きました。古賀真之先生には神岡でのシフト業務のこと、また KamLAND のハードウェアについて非常に詳しく教えていただきました。中村健吾さんには神岡坑内での作業や、シフト業務に関することを教えていただきました。皆様からのご指導により、本論文を仕上げることができました。本当にありがとうございます。

そしてニュートリノ科学研究センター技官の高山知明さん、花田博光さん、中嶋隆さんには、実験装置の設計や、実験への助言、また安全管理に関して大変お世話になりました。また東北大学金属材料研究所の  $\alpha$  放射体実験室の佐藤伊佐務先生、技官の高橋三幸さんには、線源の提供、管理などで大変お世話になりました。こちらの実験室の助力なしには本実験は行えなかったと思います。東北大学理学部硝子機器開発・研修室の柴崎正行さんには、蒸留用の硝子器具の製作だけでなく、多くの助言を頂きました。東北大学理学部機器開発研修室のみなさんには、様々な部品の製作に当たり、大変お世話になりました。

岸本康宏さんには4年の KamLAND 実験に参加したときから、実験に関すること全般の指導をして頂きました。非常に様々な面で助言、指導していただき感謝しております。アラバマ大学の Andreas Piepke にはアラバマ大学での共同実験の際、多くの助言を頂きました。また Greg Keefer には、鉛除去に関して吸着法の点から多くのデータと助言を頂きました。鈴木厚人先生、岸本康宏さん、Andreas Piepke、Greg Keefer、竹内慎君、のおかげで、アラバマ大学において、共同実験の成果を出すことができました。本当にありがとうございました。

清水格さんには実験に関することから、KamLAND の解析、特に太陽ニュートリノの解析について詳しく教えていただきました。榎本三四郎さんには DAQ に関することを詳しく教えていただきました。丸藤祐仁さんには次期純化計画の mini-LAND のことだけでなく、SK のことなども教えていただきました。吉田齊さんには短い期間でしたが、実験に関することを教えていただきました。玉江京子さんにはネットワーク、コンピューターに関することで大変お世話になりました。池田晴雄さんにはプログラムなどで特に大変お世話になりました。中嶋享さんには液体シンチレーターの性能評価について様々な助言を頂きました。お忙しい中、快く質問に答えてくださりありがとうございました。

渡辺秀樹さんには神岡でお世話になったほか、博士論文執筆の忙しい中、様々なことで相談に

のっていただきました。小関陽太郎さんには実験の基礎的なことを教えていただきました。大和田憲太郎さんには実験装置の使い方などを教えていただきました。市村晃一さんは、バックグラウンドの見積もりでは大変お世話になりました。また KamLAND についても様々なことを教えていただきました。竹内慎君には4年の KamLAND 参加から実験で大変お世話になりました。特に蒸留に関してたくさんの助言ありがとうございました。またそれ以外の面でも大変お世話になりました。同学年の Belle グループの安東慎一郎君、菊池直規君、藤川智暁君には2年間様々なことを教わりました。岐部佳朗君には KamLAND のことについて教えてもらった他、実験においても様々な手助け、助言をしてもらいました。海老原高士君には透過度に関して教えてもらったほか、その丁寧な仕事ぶりに多くを学びました。中島恭平君にはプログラムに関して助けてもらいました。今野百合さんには実験の際、お世話になりました。皆さんのおかげで充実した研究生活が送れました。ありがとうございます。

事務の三浦富士雄さん、遠藤由利さん、US 秘書の大塚明美さんには出張の手続き等で大変お世話になりました。

最後になりましたが、本論文を書くにあたって支えてくれた家族、友人に感謝します。