

修士論文

カムランド実験での
中性子阻止能と
液体シンチレーターの長期安定性
の研究

東北大学大学院理学研究科

物理学専攻

坂部 辰行

平成 13 年



目次

第1章 序論	1
第2章 KamLAND実験の概要.....	2
2.1 ニュートリノ実験	2
2.1.1 ニュートリノ振動と種々のニュートリノ実験	2
2.1.2 原子炉反電子ニュートリノ	5
2.1.3 太陽ニュートリノ	10
2.1.4 地球反ニュートリノ	12
2.1.5 超新星ニュートリノ	13
2.1.6 宇宙初起源ニュートリノ	14
2.2 KamLAND検出器	15
2.2.1 KamLAND検出器の装置構成	15
2.2.2 液体シンチレーター中での反電子ニュートリノの反応	19
第3章 液体シンチレーターの安定性の研究.....	22
3.1 概要	22
3.2 BHTによる酸化防止効果の検証	24
3.2.1 液体シンチレーターの透過率の低下について	24
3.2.2 酸化防止剤BHTの効果	26
3.3 BHTの使用可能性	30
3.3.1 実験装置	30
3.3.2 測定方法	30
3.3.3 測定結果	33
3.4 結論	41
第4章 水、及びステンレスの中性子阻止能の測定.....	42
4.1 実験の概要	43
4.2 実験装置	44
4.3 測定方法	49
4.4 タイミングの較正	51
4.5 エネルギー較正	53
4.6 測定結果	57
Appendix A BHTについて	67
Appendix B 色クエンチング	68
Appendix C 水素化合物中における中性子の運動	69

Appendix D	線源について	75
Appendix E	測定に用いた各検出器の仕様	79
参考文献		81

第1章 序論

20世紀に入り素粒子物理学は理論、実験ともに急速な進展を遂げてきた。現実世界の実に複雑な現象はたった4つの相互作用によって説明できるようになり、更にそれらを統一した究極の理論を構築する試みが現在もなお成されている。その中でも電磁相互作用、強い相互作用、弱い相互作用を統一的に説明できる現在の理論体系を総称して標準理論と呼んでいるが、この体系のなかで最も素性の知れていない粒子が我々のプロジェクト KamLand の検出対象でもあるニュートリノである。

このニュートリノは弱い相互作用のみにしか反応を示さない。弱い相互作用は粒子の Right Hand、Left Hand を区別するが、ニュートリノには Left Hand のみしかないように思えたためローレンツ変換に対し Helicity を変化させない、従って光速で飛行する粒子であると以前は解釈されていた。つまりニュートリノには質量がないということである。

そのような中で神岡陽子崩壊実験が始まる。この実験はもともと GUT において予想された、この世界の殆どの物質の構成要素である陽子が完全に安定ではなく崩壊する可能性があるという仮説を検証するためのものであったが、超新星 1987A からのニュートリノバースト、太陽内部の核融合反応で生じる太陽ニュートリノの検出に成功することで新たな疑問と、またこの検出器の可能性をあらわにすることになる。すなわち太陽ニュートリノ欠損問題などのニュートリノに関するいくつかの問題である。これは太陽から飛来するニュートリノの数が理論的に予想される量の半分にも満たないというもので、これを解決するためにニュートリノ振動という仮説が構築され、そのためにはニュートリノが微弱ながら有限質量を持つことが予想されている。

神岡実験が 1997 年にデータ収集を終えるとともに、我々東北大学では神岡実験の行われていた場所を更に掘り下げ新しく「KamLand」プロジェクトを開始させようとしている。この実験では今まで検出できなかった低エネルギーニュートリノの測定を目指しており、その実現のために様々な工夫がなされている。低エネルギー領域で最も問題になるバックグラウンドの低減や、微弱なエネルギーを分解できる大発光量特性の液体シンチレーター等がそれである。

本論文ではまず、液体シンチレーターの時間経過に伴う酸化による劣化を防止するため、酸化防止剤 BHT の効果と使用可能性について論じる。その後バックグラウンドとして問題になりうる中性子の液体シンチレーター中での反応、及び阻止能について議論する。

第2章 KamLand実験の概要

2.1 ニュートリノ実験

2.1.1 ニュートリノ振動と種々のニュートリノ実験

神岡実験による成功にともなって太陽ニュートリノ欠損問題や、スーパー神岡実験によって大気ニュートリノ異常問題などが提起されている。

太陽ニュートリノ欠損問題とは、太陽から飛来するニュートリノの数が予測値と比べて30~50%程度しか検出されなかったというものである。その中でも太陽内部の核融合反応サイクルの中で最も精度良く説明されているppニュートリノでも予想の60%しか検出されなかったことからこれは太陽標準模型の不備と考えるのは難しいとされてきた。

一方、大気ニュートリノ異常問題とは一次宇宙線により地球の大気中で生成される電子ニュートリノ及びμニュートリノのフラックスの比の天頂角分布が予測値と異なっていたというものである。そのニュートリノ生成の過程から比は $\nu_\mu : \nu_e = 2 : 1$ とされているが実験結果ではRatio (ν_e / ν_μ) ~ 0.6という値が出ている。

大気ニュートリノの生成過程

一次宇宙線 → 大気中の窒素分子、酸素分子に衝突 → π粒子の生成

$$\pi^- \rightarrow \mu^- \bar{\nu}_\mu$$

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ \nu_\mu$$

$$\mu^- \rightarrow e^- \bar{\nu}_e \nu_\mu$$

$$\mu^+ \rightarrow e^+ \nu_e \bar{\nu}_\mu$$

ν_μ と ν_e の生成比はおおよそ 2 : 1

これらの問題を解決させる理論としてニュートリノ振動現象がある。この理論ではニュートリノは質量固有状態の重ね合わせであり、そのフレーバー (ν_e , ν_μ , ν_τ) 間の質量に差がある場合振動が起こり別のフレーバーに変化できるという。例として $\nu_e \leftrightarrow \nu_\mu$ 間のニュートリノ振動についてその起こる確率を述べると、この確率はフレーバー間の混合の強度 $\sin^2 2\theta$ とそれぞれの質量の差の2乗 $\Delta m^2 (m_{\nu_e}^2 - m_{\nu_\mu}^2)$ に依存し、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) = \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m^2 (eV^2) L(m)}{E(MeV)} \right) \quad (\text{式 2.1})$$

と表されている。Lはニュートリノの飛行距離で、Eはニュートリノのエネルギーである。このニュートリノ振動現象によりあるフレーバーのニュートリノを検出していたが、そのニュートリノが他のフレーバーに変化したため観測対象からはずれ事実上予想より少なく観測されてしまったというのがニュートリノ欠損問題に対する解答であると思われる。

これからわかるように今まで質量が0とされてきたニュートリノに微弱ながら質量があるという考えが有力になり、現在のニュートリノ実験ではニュートリノ振動の頻度を測定することで各ニュートリノ間の質量差を明らかにしようとしている。その中でも今まで未知だった低エネルギー領域のニュートリノ振動の測定を目指すのがKamLANDプロジェクトである。

ここで現在行われている主なニュートリノ実験とともにKamLAND実験で探索可能なニュートリノ振動パラメータ領域と太陽ニュートリノ物質振動解を図(1.1)に示す。図中の黒い部分は振動パラメータとして許される領域を太陽ニュートリノの物質振動解である。実践の部分はこれまでの実験から90%の信頼度で排除された領域で、点線の部分は今後行われる実験で探索が期待される領域である。

LAMPF, LSNDでは800MeV陽子加速器から放出される陽子をターゲットに衝突させ生成された π 粒子や μ 粒子からのニュートリノ(数10MeV)を用いて反 μ ニュートリノから反電子ニュートリノへの振動、 μ ニュートリノから電子ニュートリノへの振動をしらべている。BNLE776, FNAL, Minos, K2Kでは加速器で生じる高エネルギー π 粒子やK粒子の飛行中の崩壊から生じた数GeVのニュートリノを測定している。

その中でもMinos, K2Kはニュートリノの飛行距離がそれぞれ700km、250kmと長距離であることからlong baseline実験と呼ばれている。KamLANDではBugey, PaloVerde, CHOOZと同様原子炉から飛来するニュートリノの測定を目的としている。

そこでKamLANDの性能を他の検出器と比較して述べる。式(2.1)よりフレーバー間の混合角 $\sin^2 2\theta$ が与えられた場合、ニュートリノ振動の起こる確率が最大となる質量差は、

$$\Delta m^2(eV^2) = \frac{1}{1.27} \times \frac{\pi}{2} \times \frac{E(MeV)}{L(m)} \quad (式 2.2)$$

となる。これより高エネルギー、低飛行距離での測定になるほど振動の検出が有利にな

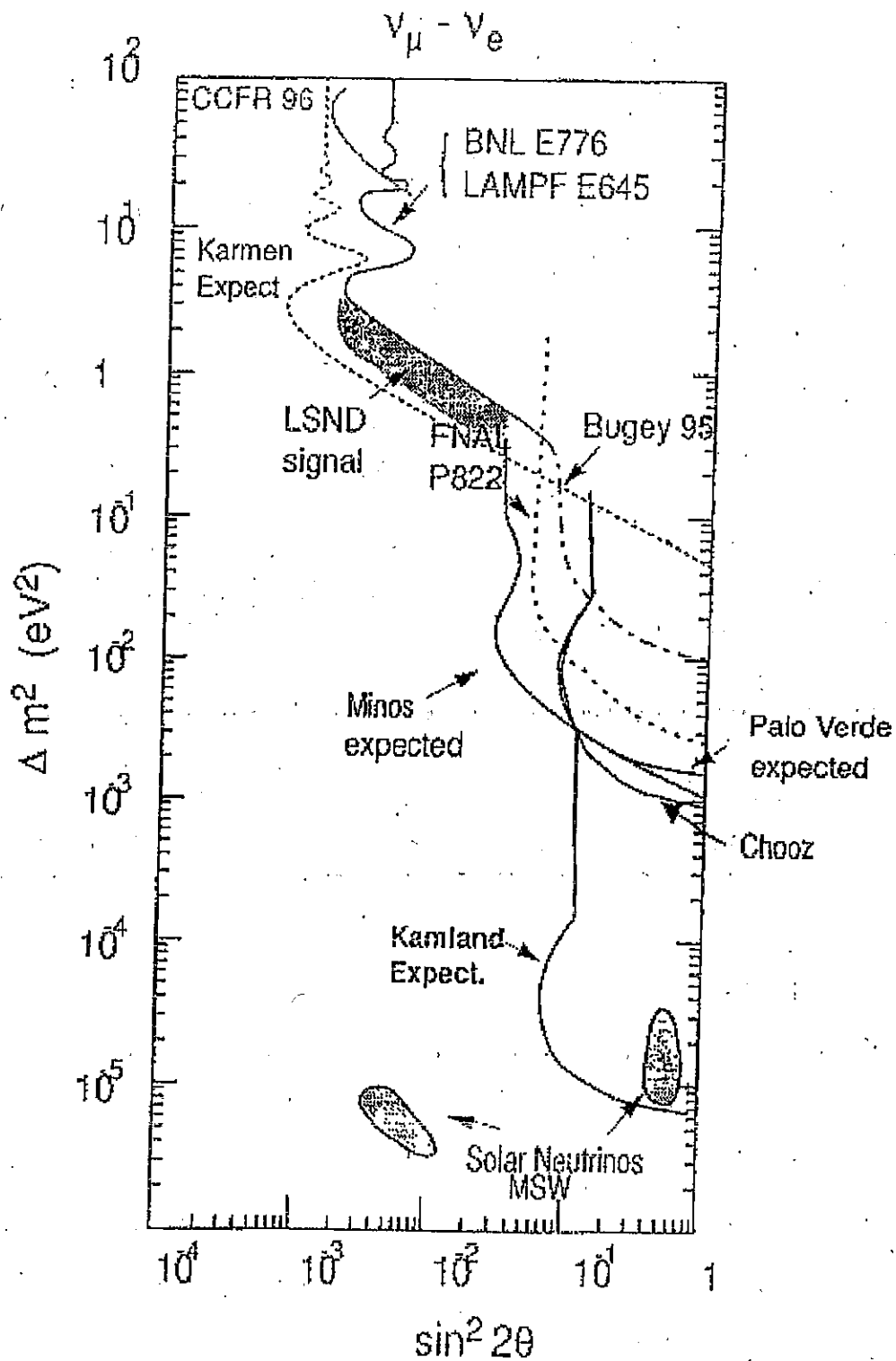


図 2.1 様々なニュートリノ実験グループによる μ 、電子ニュートリノ間の振動パラメーターの 90% C. L 排除領域探索結果 (G. Gratta, stanford-HEP-97-03)

る。以下にKamLandを含め各原子炉ニュートリノ検出器の性能を示す。

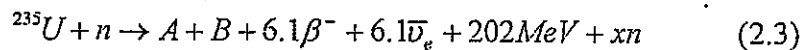
表(2.1) 各原子炉反ニュートリノ検出器の性能比較

	検出器内ターゲット の質量 (ton)	原子炉との 距離 (km)	Δm^2
Bugey	1.2	154	2×10^{-2}
CHOOZ	4.8	1	1×10^{-3}
Palo Verde	12	750	$\sim 10^{-3}$
KamLand	1000	~ 150	$\sim 10^{-5}$

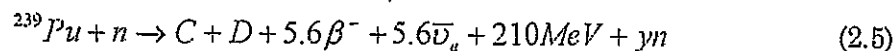
KamLand実験ではニュートリノの飛行距離が150 km、平均エネルギーが数MeVであることから $\Delta m^2 \sim 10^{-5}$ という領域まで探索が可能であり、現在原子炉ニュートリノ検出器としては最も感度の高いCHOOZ (L=1000m, E~3MeV)の100倍の感度を誇る。これによりKamLandでは太陽ニュートリノ物質振動解の1つである大混合角解 (solar LMA) をカバーし、初めての直接的な検証を期待されている。

2.1.2 原子炉反電子ニュートリノ

先述したとおりKamLANDの主な検出対象は原子炉からくる反電子ニュートリノである。原子炉内では主な構成要素である ^{235}U や ^{238}U などが核分裂を起こすことでニュートリノを生成する。 ^{235}U は濃縮ウラン中約3%を占めており遅い中性子によって核分裂を起こして反電子ニュートリノと平均約2.47個の中性子を放出する。またこの中性子を吸収することで連鎖反応を引き起こす。



天然ウランの中で最も多い ^{238}U は0.8MeV以上の速い中性子を吸収することで ^{239}U になり、その後 β 崩壊をして ^{239}Pu になる。この ^{239}Pu が核分裂を起こして原子炉の燃料になる。更にその後 ^{239}Pu は遅い中性子により核分裂を起こして反電子ニュートリノと中性子を放出する。



こうして核分裂一回あたり平均6個の反電子ニュートリノが放出される。

原子炉ニュートリノを検出する利点は上記の反応式からわかるとおりフレーバー混合の

ない純度の高い反電子ニュートリノが得られることである。また原子炉内の原料の構成比は時間の経過にともなう変化するが、これも1日単位で計算可能なので数%の精度でニュートリノのフラックスを知ることができる。従ってこのフラックスから予想される検出器へのニュートリノの入射量と実際の検出量を比較することでニュートリノ振動の検証が可能となるのである。

K a m L A N Dのある岐阜県神岡を中心に半径約175±35 kmの円周上には、世界最大規模の原子炉である柏崎原発をはじめ、大飯、高浜、浜岡、敦賀など16の原子炉が存在している。図2.2に日本国内の原子炉の分布図を示す。また表2.2に主な原子炉の最大出力時の1.8 MeV以上の反電子ニュートリノのフラックスと熱出力、神岡との距離を示す。

日本全国の原子炉から来る反電子ニュートリノの全フラックスは $1.3 \times 10^6 (cm^{-2} s^{-1})$ と予想され、このうち80%は神岡から140 km～210 kmの範囲から検出器へ入射する。これに基づいて原子炉内の原料を ^{235}U が70%、 ^{239}Pu が30%であるとした場合のエネルギースペクトルを図2.3に示した。このうちK a m L A N Dで予想される原子炉反電子ニュートリノのイベントレートは有効体積中で1～2イベント/日である。

日本国内の原子炉は夏の終わりから秋にかけて2～3ヶ月程メンテナンスのため運転を一時停止する。そのためK a m L A N Dに到達する反電子ニュートリノのフラックスも季節変動をすることが予想されている。図2.4に過去5年間の各原子炉の運転記録をもとに求められたパワーフラックスの変動を示す。これはK a m L A N Dと各原子炉との距離を半径にする球上、単位面積あたりの熱出力量である。

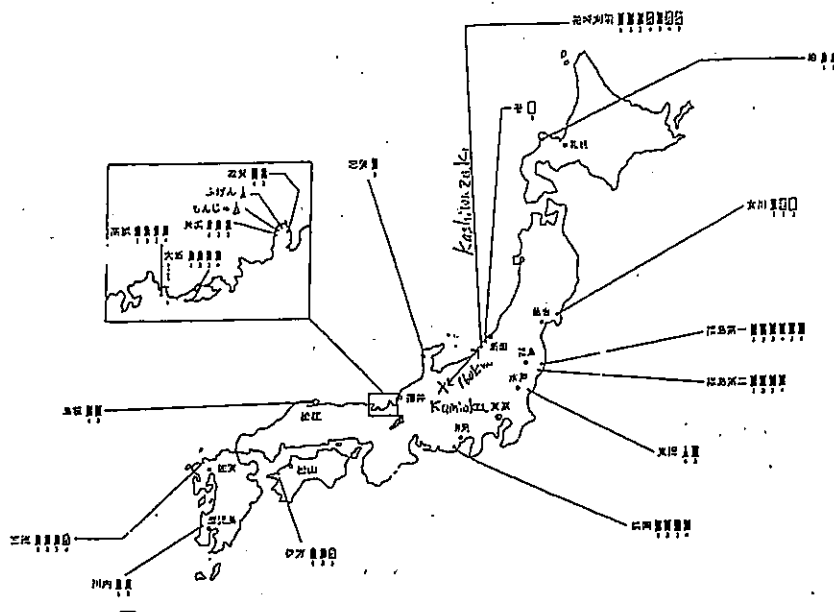


図2-2 日本国内の原子力発電所の分布図

Reactor Site	Distance (km)	Therm. Power (GW)	Max. Flux ($10^5 \bar{\nu}_e/\text{cm}^2/\text{s}$)
柏崎	160.0	24.6	4.25
大飯	179.5	13.7	1.90
高浜	190.6	10.2	1.24
浜岡	214.0	10.6	1.03
敦賀	138.6	4.49	1.03
志賀	80.57	1.59	1.08
美浜	145.4	4.93	1.03
福島第一	344.0	14.2	0.53
福島第二	344.0	13.2	0.49
東海	294.6	3.29	0.17
島根	414.0	3.82	0.10
女川	430.2	4.09	0.10
伊方	561.2	5.96	0.08
玄海	755.4	6.72	0.05
泊	783.5	3.30	0.02
川内	824.1	5.32	0.03
合計	—	130	13.1

表2-2 日本国内の原子力発電所の熱出力と神岡までの距離

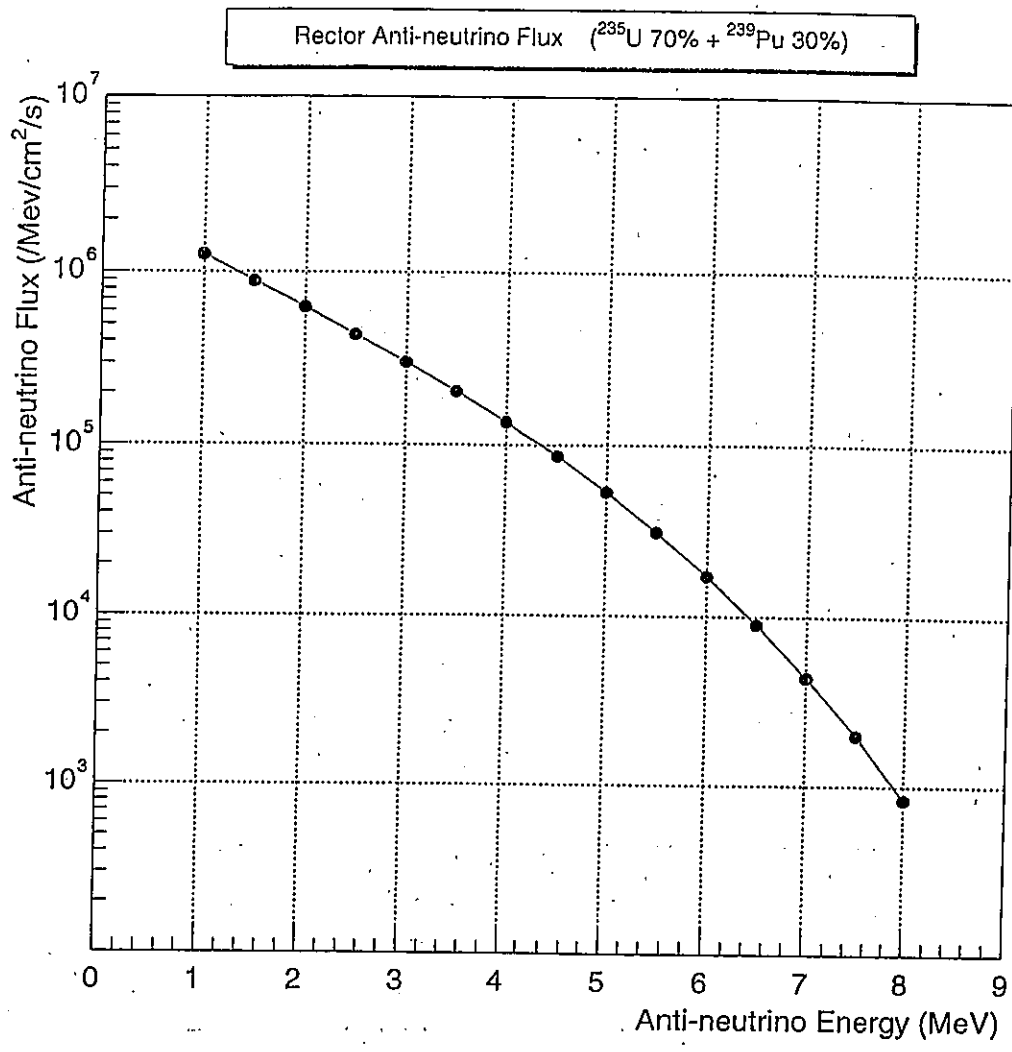
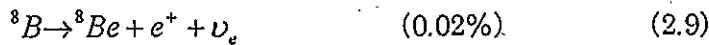
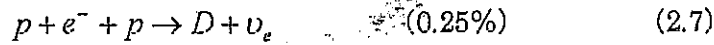


図2-3 日本国内の原発から神岡に到達する原子炉反ニュートリノフラックス

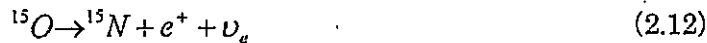
2.1.3 太陽ニュートリノ

太陽も巨大なニュートリノ源である。太陽から飛来するニュートリノの数が予測よりもはるかに少ないことが問題になっていることは先述した。太陽では絶えず核融合反応が起こっており、これらは p p チェーンと CNO サイクルの 2 種の過程に分けられる。以下に p p チェーン反応を示す。



これらのニュートリノは順に p p ニュートリノ、p e p ニュートリノ、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ、 ${}^8\text{B}$ ニュートリノ、hep ニュートリノと呼ばれる。

次に CNO サイクルの反応を示す。



これらの反応のうち 3 体崩壊によって放出されるニュートリノは連続エネルギースペクトルを持ち、2 体崩壊によって放出されるものは単色エネルギーを持つことがわかっている。表 2.3 にこれらの反応で放出されるニュートリノの平均エネルギーを、図 2.8 にそれらの予想されるエネルギースペクトルを示す。

p p ニュートリノのエネルギーは最大で 420 keV と最小だが、フラックスの強度は最大である。またこの p p ニュートリノのフラックスは太陽モデルの不定性には余り左右されない。hep ニュートリノは最も高いエネルギーを持つがフラックス強度が弱いため観測が難しいのが現状である。

Homestake 実験では ${}^7\text{Be}$ と ${}^8\text{B}$ ニュートリノの事象を主に観測し、その量が理論的な予

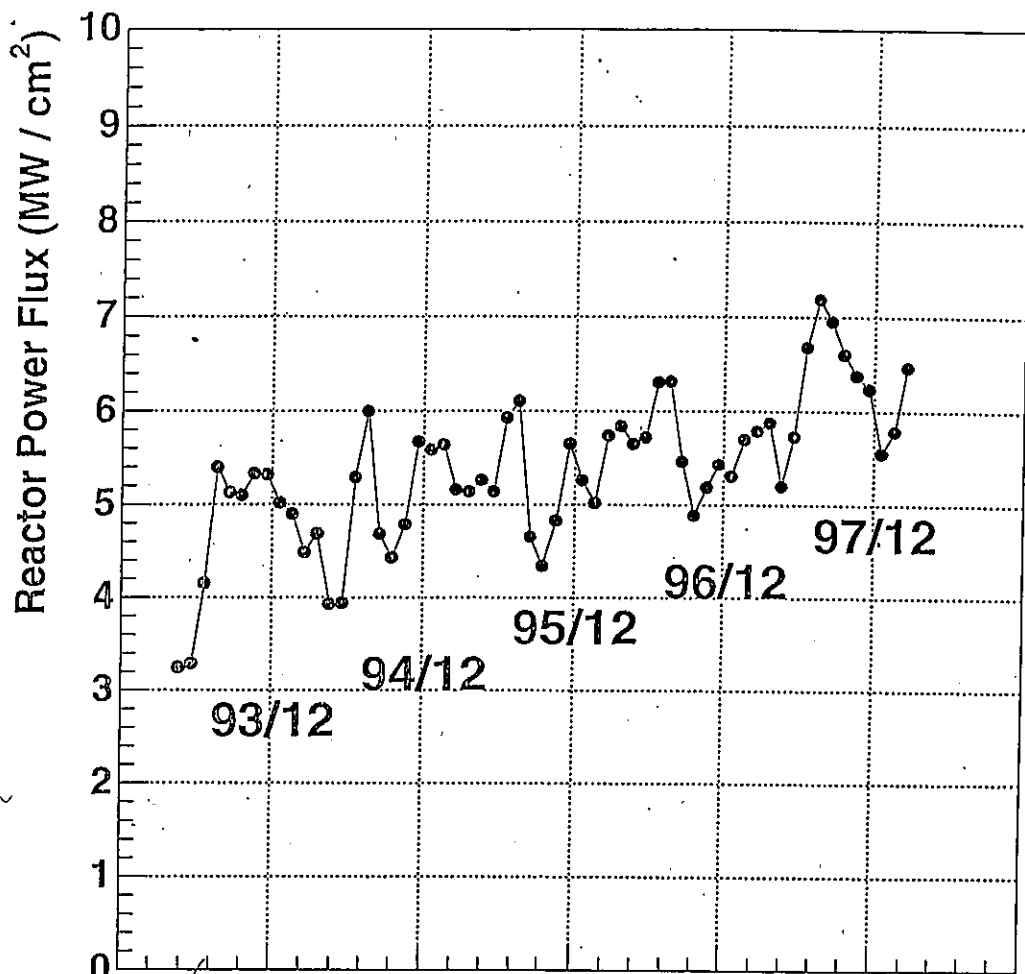


図2-4 原子炉のパワーフラックスの季節変動

想の 29% しかないという結果を得た。スーパー神岡実験では 5~6MeV 以上の⁸B ニュートリノの観測により検出量が予想の 35% しかないという結果を得ている。これらの結果がいわゆる太陽ニュートリノ欠損問題である。

KamLAND 実験では極低放射能環境と液体シンチレータの大発光量特性による高エネルギー分解能という長所を活かして⁷Be、⁸B ニュートリノの検出を目指し、MSW 効果の検証、太陽ニュートリノ欠損問題の解決を試みる。

Neutrino	Energy (MeV)
pp	≤0.420
pep	1.442
⁷ Be	0.861 (90%) 0.383 (10%)
⁸ B	≤15.0
hep	≤18.77
¹³ N	≤1.199
¹⁵ O	≤1.732
¹⁷ F	≤1.732

表2-3 太陽ニュートリノのエネルギー

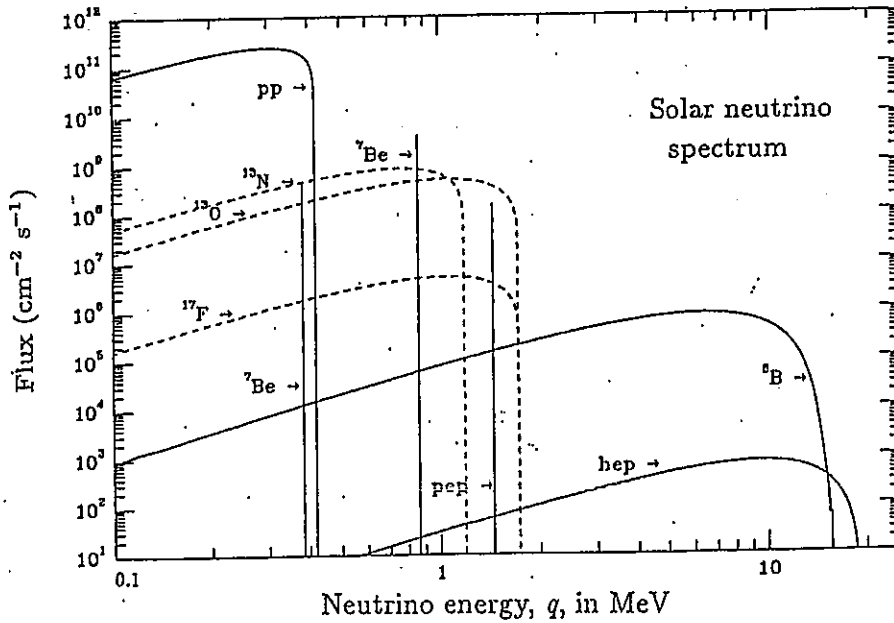


図2-5 標準太陽模型の予想する太陽ニュートリノのエネルギースペクトル

2.1.4 地球反ニュートリノ

ニュートリノは宇宙からのみではなく地球内部からも発生している。地球はその表面から約 40TW の熱を放出しているのだが、そのうち 40%は放射化熱であり、さらにその 90%は ^{238}U ^{232}Th などの放射性元素の β 崩壊によって生じる。この崩壊の際にニュートリノが生成されるのだが、現在のところ物理的に検出されたという報告はない。

地球内部の U 含有量と U/Th 比に関して様々な理論模型があり解明はされていないのだが、一般的には約 50%の U,Th はマントルに、他は大陸プレートの下にある地殻に存在しているとされていて海洋プレート下の地殻にはあまり存在しないと考えられている。

KamLAND ではこの地球内部で生成される地球反ニュートリノの検出も目指している。一方、イタリア Gran Sasso にある Borexino 検出器でもこの地球反ニュートリノの検出を目指しており、互いの異なった地理条件においてのデータを比較することで地球の内部構造の解明に大きな手掛かりが得られることを期待されている。図 2.6 に地球反ニュートリノの予想されるエネルギースペクトルを示す。

Terrestrial Antineutrino Spectrum

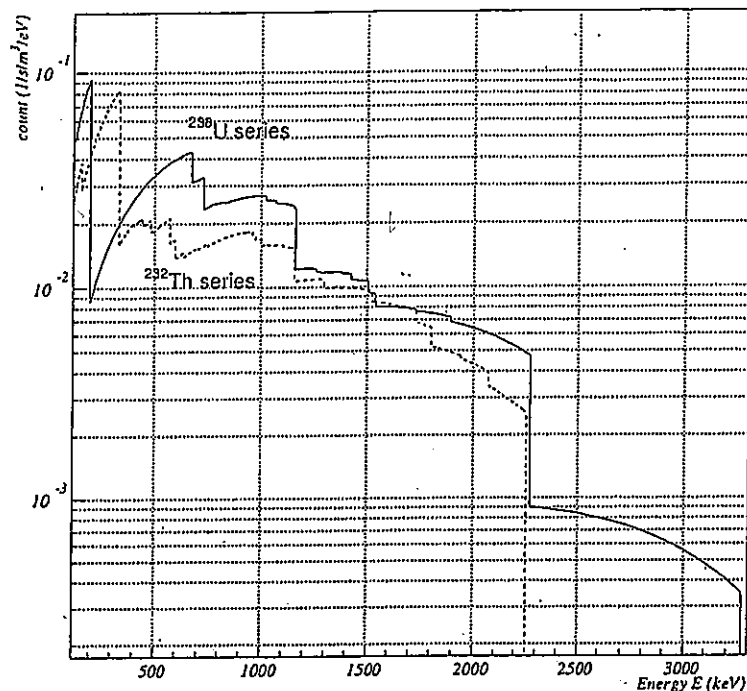
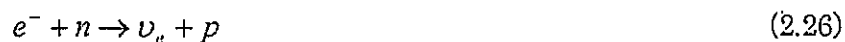
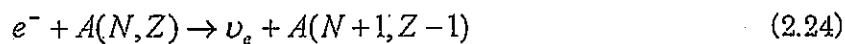


図2-6 地球反ニュートリノのエネルギースペクトル

2.1.5 超新星ニュートリノ

恒星は自己の重力で自らを支えているガスの塊であり、内部の核融合反応で解放されるエネルギーで光っている。太陽の質量の8倍以上の恒星は重力崩壊型超新星爆発という形でその一生を終え、その際には太陽高度の 10^9 倍の明るさを示す。このとき解放されるエネルギーは約 10^{53} ergでその99%はニュートリノのエネルギーとして放出される。このニュートリノは超新星ニュートリノと呼ばれている。以下にその生成過程を示す。



この中でも (2.27) の反応では 6 種すべてのフレーバーのニュートリノが生成される。

KamLAND ではこの超新星ニュートリノの検出も目標としている。KamLAND 検出器の液体シンチレーターはノルマルパラフィン、ブソイドクメンを主成分とした有機液体で構成されているため多数の炭素原子を含んでいる。これによって液体シンチレーター特有の反応によってニュートリノの検出をすることも可能である。以下に液体シンチレーター中でのニュートリノ検出の過程を示す。

$$\nu + e \rightarrow \nu + e \quad (2.28)$$

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \quad (2.29)$$

$$\nu_e + {}^{12}\text{C} \rightarrow e + {}^{12}\text{N} \quad (17.3\text{MeV}) \quad (2.30)$$

$$\bar{\nu}_e + {}^{12}\text{C} \rightarrow e^+ + {}^{12}\text{B} \quad (14.4\text{MeV}) \quad (2.31)$$

$$\nu + {}^{12}\text{C} \rightarrow \nu + {}^{12}\text{C}^* \quad (15.11\text{MeV}) \quad (2.32)$$

これらの反応によって超新星ニュートリノを検出することで星の進化論に関する新たな情報が期待されている。

2.1.6 宇宙初起源ニュートリノ

宇宙が誕生して以来現在に至るまで莫大な量のニュートリノが放出されているはずである。もしニュートリノの寿命が宇宙年齢 ($\sim 10^{10}$ year) より長いとすると背景放射とともに宇宙初期のニュートリノが今もなお宇宙空間を飛行している可能性がある。またニュートリノがダークマターの主な構成要素としての期待もあったが、現在ではこれについては否定的な考えが主流となっている。いずれにせよこの宇宙初起源ニュートリノを観測することで、宇宙の進化の過程で起きた現象を調べることができ、宇宙大規模構造形成機構の解明にとって大きな手掛かりを得る可能性がある。

2.2 KamLAND 検出器

2.2.1 KamLAND 検出器の装置構成

KamLAND では低エネルギーニュートリノの検出を主な目的としているため、その達成のために様々な工夫が装置構成になされていることは先述した。ここではそれらについて詳しく解説していく。

まず KamLAND は岐阜県吉城郡神岡町東茂住にある池の山の山頂直下 1000m (2700m.w.e) に建設されている。頭上 1000m の岩盤のおかげで宇宙線 μ 粒子のフラックスを地上の約 10^{-5} 倍 ($1.6 \times 10^{-3} m^{-2} s^{-1}$) まで低減した環境になっている。

また、低エネルギー領域での実験においては岩盤や検出器自体に含まれる U,Th の崩壊系列元素や K,Rn 等からくる環境 γ 線も非常に大きな問題であるため、その解決のために KamLAND は複雑な構造をとっている。

KamLAND は図 2.8 に示すとおり 3 層構造になっている。最も内側に要である液体シンチレーターを満たしたプラスチックバルーン、その外側にはバッファオイル槽がステンレス容器中に構築されていて、更にその外側には超純水槽が存在する。

まず KamLAND では低エネルギーニュートリノを観測するためエネルギー分解能の高い大発光量特性の液体シンチレーターを検出器として採用している。成分としては発行剤として PPO を使用し、これをノルマルパラフィンオイルとブソイドクメンの混合液に溶解させる。濃度はノルマルパラフィン：ブソイドクメン = 8 : 2、PPO = 1.5g/l である。この構成は発光量はもとより光透過率、粒子識別能力等を考慮して決定されたものである。またこの液体シンチレーターは全体積が $1200 m^3$ で、プラスチックバルーン内に満たされる。

バルーンは直径 13m で、内外の密度差や水圧に十分耐え得る 2 軸延伸ナイロンで構成されていて、また Rn 等の透過性の低い EVOH ナイロンを使用した多層膜構造になっている。バルーンの光透過率は液体シンチレーターの発行波長 400nm に対して 93% である。

液体シンチレーターを満たしたバルーン外部はバッファオイルで満たされている。屈折率の差異を考慮し液体シンチレーターの主成分と同じノルマルパラフィンを用いている。バッファオイル層は $3000 m^3$ の球形ステンレスタンクに満たされており光電子増倍管、ステンレス壁等に含まれる放射性同位元素からの γ 線を遮蔽する役割を担っている。

そして最も外側には純水に満たされた直径 19.6m、高さ 20mの円筒形超純水槽が存在する。この槽には 20 インチ光電子増倍管が設置されており検出器外部から来る μ 粒子等の荷電粒子によるチェレンコフ光を検出することでそれらのバックグラウンドを識別する。

液体シンチレーター層、パフアオイル層を囲むステンレスタンクには上述の 20 インチ光電子増倍管と新型の 17 インチ光電子増倍管がそれぞれ 590 本、1295 本、計 1885 本取り付けられている。17 インチ光電子増倍管はスーパー神岡実験で用いられている 20 インチ光電子増倍管で、ダイノードを時間応答性の良いラインフォーカス型に改良したもので、TTS が減少し P/V 比を向上させたものである。これら全光電子増倍管による光収集効率は約 30% である。

液体シンチレーター、純水に混入している放射性同位元素も大きなバックグラウンド源となるので、これらを純化するための純化装置も設置されている。原子炉ニュートリノの検出では U,Th の含有量は 10^{-14} g/g、K は 10^{-12} g/g 以下、 ^7Be ニュートリノの検出ではそれぞれ 10^{-16} g/g、 10^{-14} g/g 以下の実現が必要である。また酸素クエンチングの原因となる液体シンチレーター中の溶存酸素を取り除く必要もあり、方法としては純水による液液抽出法と窒素ガスパージを用いる。

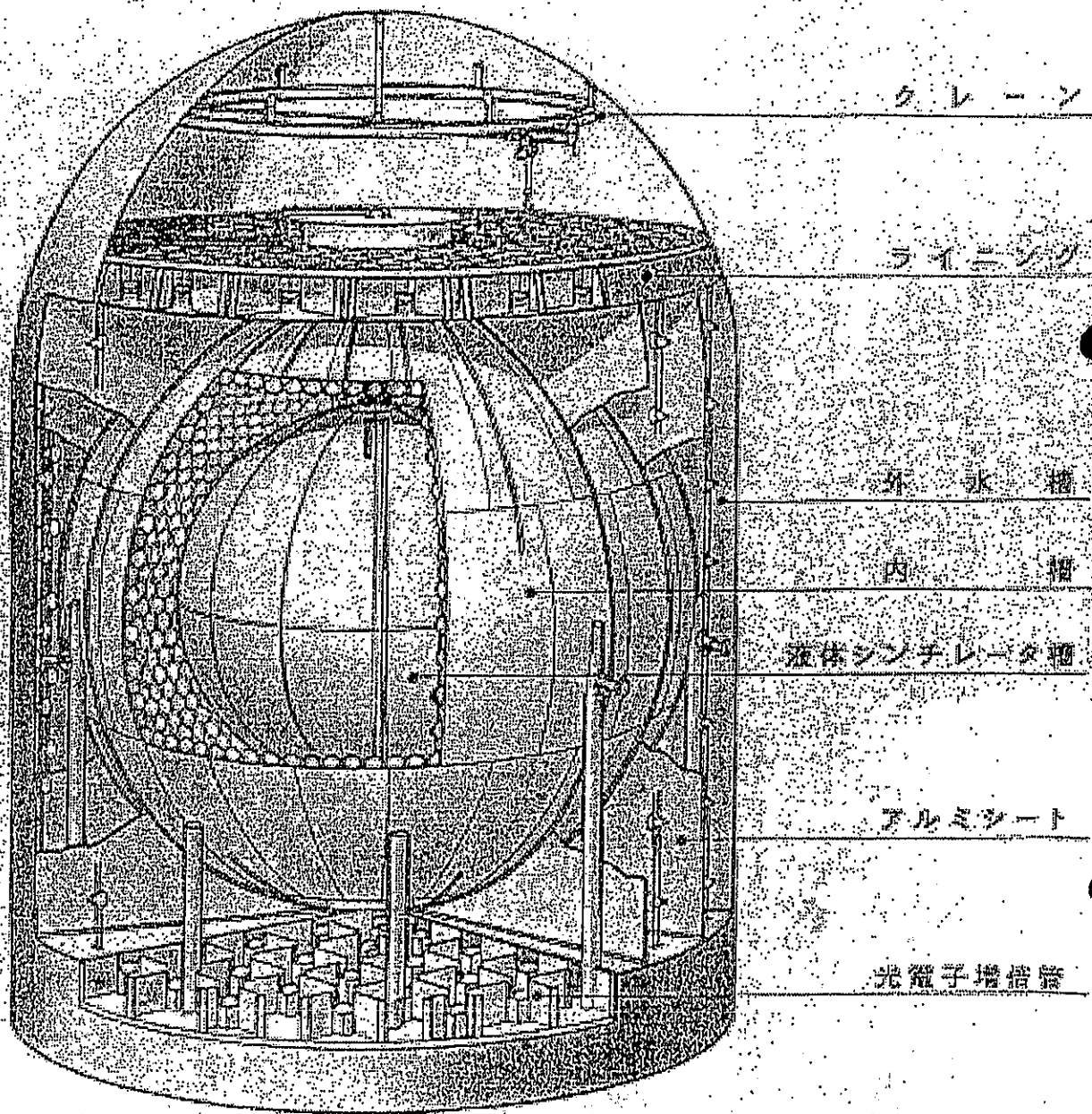


図2-8 KamLAND検出器の構成図

2.2.2 液体シンチレーター中での

反電子ニュートリノの反応

ここでは KamLAND 検出器の主な検出対象である反電子ニュートリノの液体シンチレーター中での反応と検出の方法について簡単に述べる。

液体シンチレーターは有機液体であるため多数の水素原子、従って陽子を含んでいる。この陽子と反電子ニュートリノの逆 β 崩壊を反応の起点として利用する。

陽子と反電子ニュートリノの逆 β 崩壊によって陽電子と中性子が放出される。陽子と中性子の静止エネルギーの差は $\Delta Mc^2 \sim 1.293 \text{ MeV}$ であるので、放出される陽電子の全エネルギーは $E_{e^+} = E_0 - \Delta Mc^2$ となる。これから陽電子の静止エネルギー (511KeV) を引くと陽電子の運動エネルギーは $E_{e^+} = E_0 - 1.8 \text{ MeV}$ と出る。陽電子は荷電粒子であるので液体シンチレーター中を運動する間この運動エネルギーを電磁相互作用を介してシンチレーション光をとって発光させながら数 cm 程飛行し、最終的に液体シンチレーター中の電子と対消滅して 511KeV の γ 線を 2 本発生させる。このガンマ線も約 10cm 程飛行した後液体シンチレーター中の原子と反応し、シンチレーション光として放出される。従って逆 β 崩壊で生じた陽電子によって $E_0 - 1.8 + 1.02 \text{ MeV} = E_0 - 0.8 \text{ MeV}$ のエネルギーがシンチレーション光として放出され、これを prompt signal として検出する。

一方、中性子の方は数 10KeV 程度のエネルギーを持ち、液体シンチレーター中の陽子を反跳しながら徐々にエネルギーを失い熱中性子化される。その後陽子に吸収され重陽子を形成するが、その際結合エネルギーの差額分 (2.2MeV) のエネルギーを γ 線として放出する。このガンマ線もいずれシンチレーション光に変換され delayed signal として検出される。ちなみに中性子が放出され陽子に吸収されるまでには約 170 μ sec を要し、その間に約 30 cm 程飛行することもわかっている。

まとめると KamLAND での反電子ニュートリノの検出におけるエネルギー閾値は 1.8MeV であり、 $E_0 - 0.8 \text{ MeV}$ の prompt signal と 2.2MeV の delayed signal の 2 つの信号を同時計数することで反電子ニュートリノの信号を識別する。

ここで KamLAND 検出器における原子炉反電子ニュートリノのイベントレートについて概算してみる。陽子と反電子ニュートリノの反応断面積は、

$$\sigma(E_{\nu}) = \frac{2\pi^2}{m_e^5 f \tau_n} p_e E_e = 9.5 \times 10^{-44} (E_{\nu} - 1.3) \sqrt{(E_{\nu} - 1.3)^2 - m_e^2} \quad (\text{cm}^2) \quad (2.33)$$

である。ここで τ_n は中性子の寿命である。これを用いて反電子ニュートリノの検出期中での反応頻度を表すと、

$$N = \sigma(E_{\nu}) \times F_{\nu}(E_{\nu}) \times N_p \times \left\{ 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m^2 (eV^2) L}{E(\text{MeV})} \right) \right\} \quad (2.34)$$

となる。ここで F_{ν} は原子炉反電子ニュートリノのフラックスで図 2.3 を用いる。また N_p は、検出器内の陽子の数で、液体シンチレーター中の水素と炭素の比 $r_{H/C}$ (~ 1.9)、液体シンチレーターの重量 W (有効体積で 500t) を用いると、

$$N_p = \frac{N_A \times W}{(H\text{の原子量} + C\text{の原子量} / r_{H/C})} \sim 4.1 \times 10^{31} \quad (2.35)$$

と表せる。

検出効率を 100% としたときの (2.34) から求められる原子炉反電子ニュートリノのフラックスを図 2.10 に示す。●印はニュートリノ振動のない場合予想されるスペクトルで、■印は大混合角解 ($\sin^2 2\theta = 0.7$ 、 $\Delta m^2 = 2 \times 10^{-5}$) のときのものである。これを積分することで反電子ニュートリノのイベントレートはニュートリノ振動がない場合 1 年で 390 event であることがわかっている。

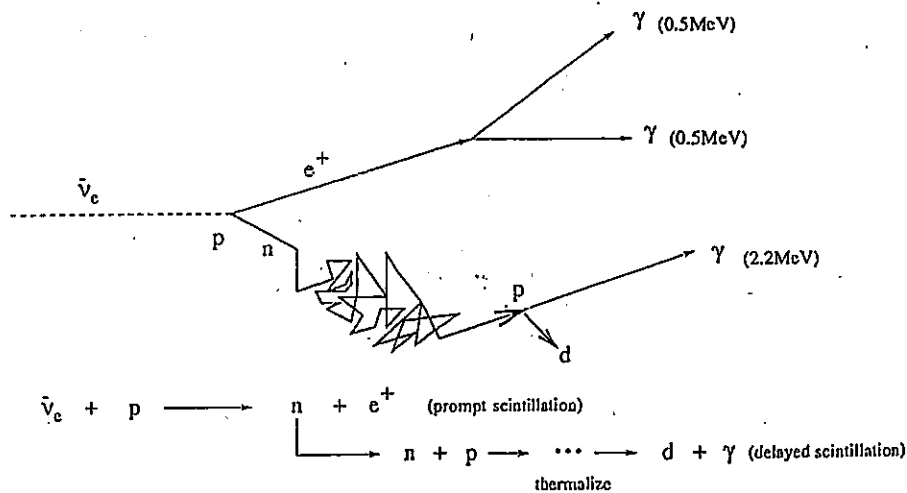


図2-9 KamLAND検出機内での電子反ニュートリノの反応

Reactor Anti-neutrino 1 year Event Spectra

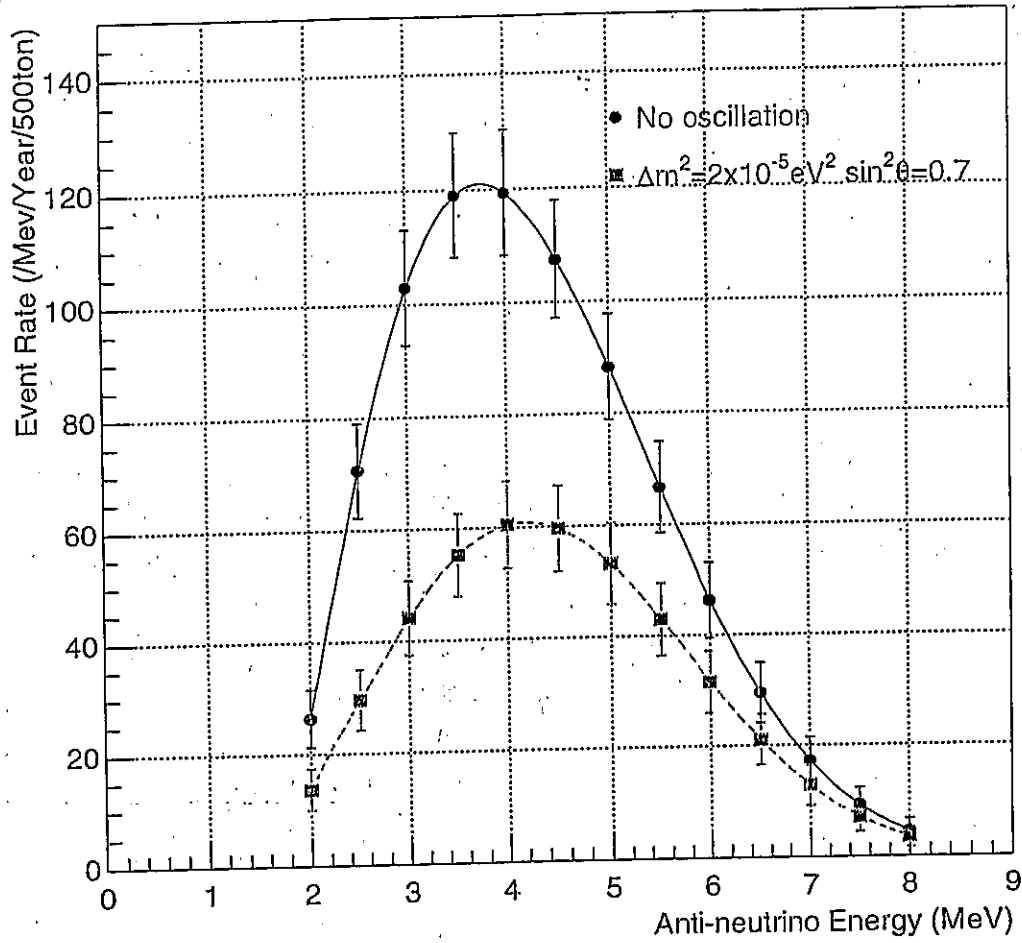


図2-10 原子炉反ニュートリノがKamLAND検出器内で起こす1年間の事象のエネルギー分布。実線は振動がない場合で、破線は大混合角解の場合に起こるスペクトルである

第3章 液体シンチレーターの安定性の研究

3.1 概説

KamLAND で用いる液体シンチレーターはノルマルパラフィン (N12) 80% + Pseudocumen (P.C : 1,2,4-Trimethyl Benzene) 20% + PPO (2,5-diphenyl oxazole) 1.5g/l から成り立っているが、この中でノルマルパラフィン以外はベンゼン環等に2重結合を持っているため酸化され液体シンチレーターとしての性質を変化させる可能性がある。例として新しく作成した液体シンチレーターと約2年半前に作成し直射日光に晒し続けたものとの発光スペクトルを図3-1に示す。図3-2にはこの測定に用いた蛍光光度計の略図も示しておく。

KamLAND で用いる液体シンチレーターの発光体は PPO であるが、この発光スペクトルは約 400nm の近紫外領域にある。図3-1を見ると明らかに発光スペクトルは変異している。特に 380nm 付近のピーク周辺では発光量が約 70%以上低下している。KamLAND で予定しているニュートリノの測定においては原子炉ニュートリノで数 MeV、太陽ニュートリノのうち ${}^7\text{Be}$ ニュートリノでは 862KeV と他の同種の検出器に対してより低いエネルギーに対する感度を誇っている。エネルギー分解能は液体シンチレーターの発光量とその透過率によってどれだけ多くの photon が光電子増倍管まで到達できるかに大きくかかっている訳であるが、液体シンチレーターの劣化によりこれら発光量、透過率に変化をきたすと当然ながら検出器の感度に影響を与える。また原子炉ニュートリノの測定に関していえば2章でも前述したようにイベントレートが 1 event/day と極めて低く、充分な統計を取るためには最低でも3年以上の測定を要する。ここではそういった長期間の測定の間液体シンチレーターがどれだけ劣化するか、及び仮にそれが液体シンチレーターの酸化に起因するものとした場合、それを防止するために酸化防止剤である BHT がどれだけ有効かということについて議論する。その後 BHT を入れることで逆に透過率の低下を招くようなことがあってはいけないので、そういった悪影響がないかを実機サイズで調べ、BHT の使用可能性について述べる。

図3.1 ではサンプルとしての液体シンチレーターは直射日光に晒しているため極端な例であるといえるが、実際には発光スペクトルの変化のみならず黄色に着色しておりまた異臭を漂わせていた。特に液体シンチレーターが着色を示すとそれにより色クエンチングを引き起こす。これはシンチレーター自身がその色に応じて吸収スペクトルを持つようになるため発光体によって発光されたシンチレーション光のスペクトルのうち吸収スペクトル

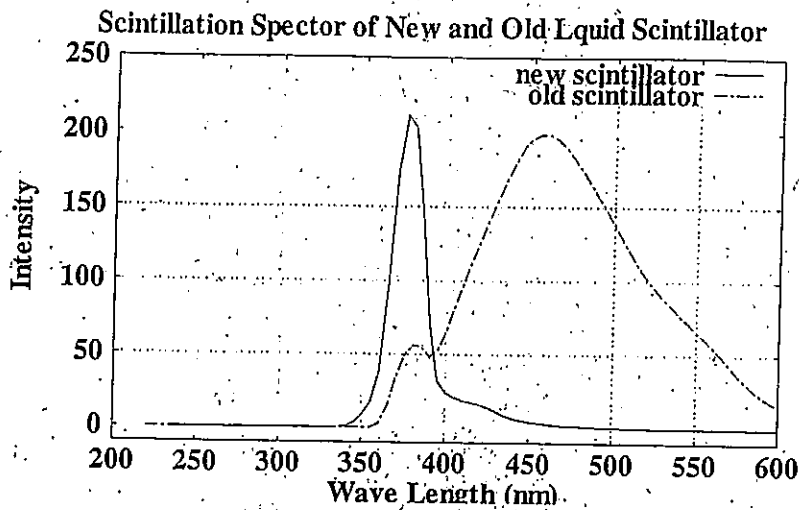


図 3.1 液体シンチレーターの発光スペクトル

続け一方は作成したばかりのもので、もう一方は2年半前に作成し直射日光に晒したもの。明らかに発光波長領域が変異しているのがわかる。

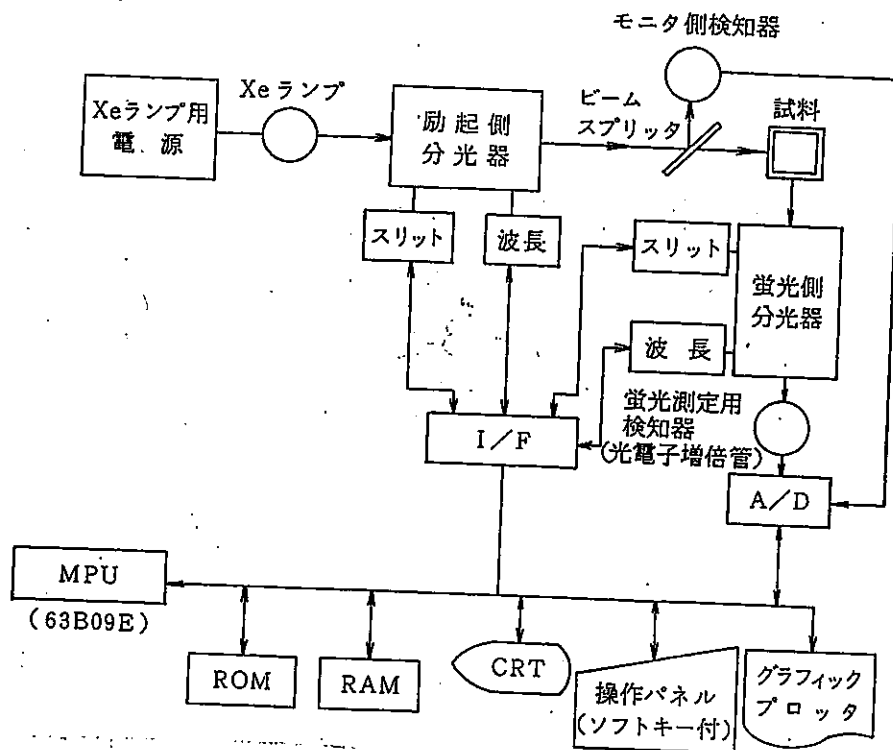


図 3.2 蛍光光度計 F2000 HITACHI の構造

と重なる部分が吸収され有効発行量が減少し、従ってエネルギー分解能の低下をもたらすというものである。着色が青色や紫色といった短波長側の領域のものであれば吸収スペクトルは長波長側に存在する。しかしこの例のように黄色や赤色といった長波長領域の色に着色した場合、吸収スペクトルは短波長側に存在する。一方 PPO の発光領域は約 400nm と近紫外領域に存在するため色クエンチングによる効果が大いと思われる。(Appendix B 参照)

3.2 BHTによる酸化防止効果の検証

3.2.1 液体シンチレーターの透過率の低下について

まず、液体シンチレーターの透過率の低下について調べた。方法は KamLAND で用いるのと同じ液体シンチレーターを作成し、これをバイアル中に入れ45℃の恒温槽で18ヶ月間保存したのものについて透過率を、吸光光度計を用いて測定した。KamLAND の設置してある鉱山内部の気温は大体15度なので、化学反応速度と温度の関係を考慮すると（気温が10℃上昇すると反応速度は2倍になる）、このサンプルは実際の検出器内で約12年間分の酸化を被ったのに等しい。図3.3に測定に用いた吸光光度計の装置構成について示す。

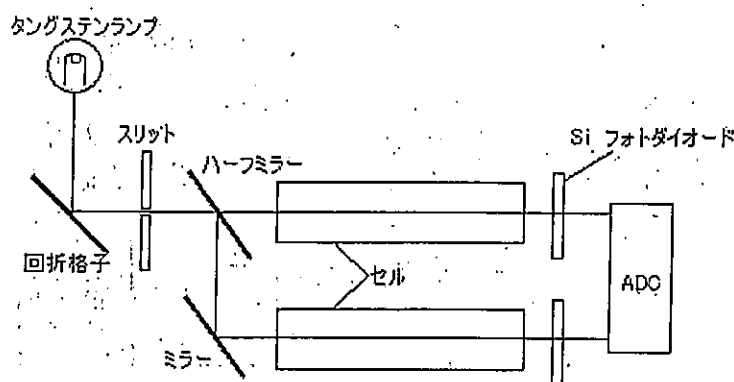


図3.3 吸光光度計 U2000F HITACHI の内部構造

この装置では、タングステンランプからの光を2つのセルに入射させ透過光量をADCで測定する。セルはガラス製の角容器で、長さは1, 5, 10 cmとバリエーションがある。一方のセルにリファレンス用の液体を入れ、他方に測定用の試料を入れて透過光量の比が出力される。

この測定ではセル（ガラス製の容器）として1 cm×1 cm のものを用いた。このセルのReference側にはミネラルオイル（P250）を、Sample側には液体シンチレーターを入れ、ハーフミラーによって分光されたタングステンランプの光線を入射させる。そしてセルを通過してフォトダイオードまで到達した光量をADCでデジタル化し、Referenceに対するSampleの透過光量の比率が出力される。

ミネラルオイルと液体シンチレーターの大部分を占めるノルマルパラフィンについてはほとんど透明度が等しい。従って普通はこの透過光の比はほぼ100%に近い値を各波長に対して保ち続ける。図3.4に新しい液体シンチレーターと上記の18ヶ月間45℃で保存した液体シンチレーターとのそれぞれのミネラルオイルに対する透過光量比を示す。ここ

でミネラルオイル自身の透過率は350 nm 程度までは透明であるがそれ以下の波長の光に対しては急激に透明度が減少し不透明になるので図 3.4 において信頼できるデータの範囲は約350 nm 以上であることに注意していただきたい。

図 3.4 をみると18ヶ月間保存したサンプルでは、PPOの発光波長のピークである380 nm付近で約20%の透過光の低下がみられる。

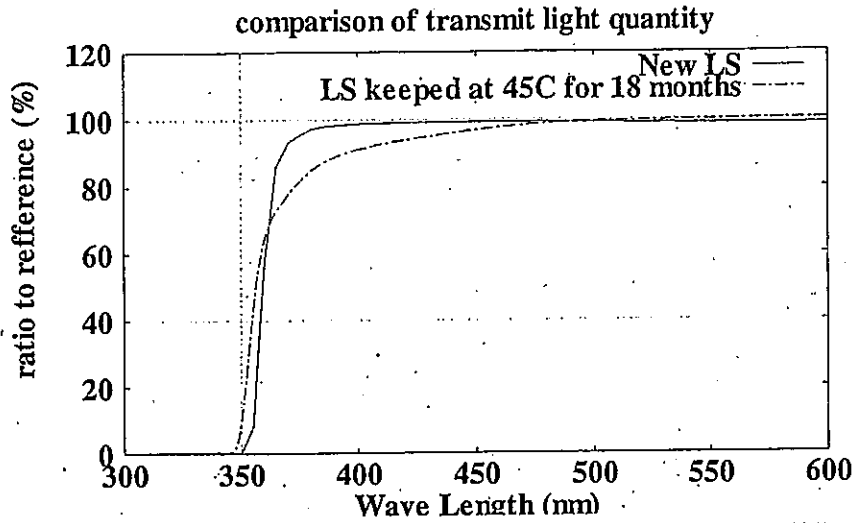


図 3.4_作成したばかりの液体シンチレーターと、45℃で18ヶ月間保存した液体シンチレーターとの透過光量の比較。リファレンスにはノルマルパラフィンを用いている。セルは1cm。

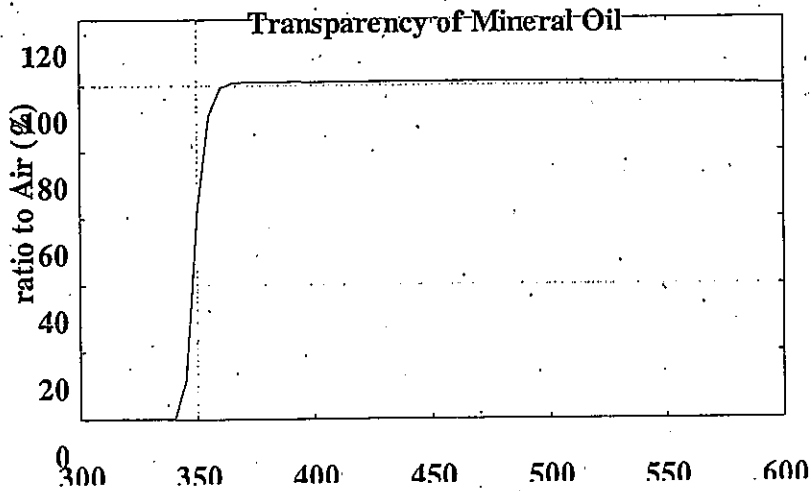


図 3.5_ミネラルオイルの空気に対する透過光量の比

ミネラルオイルは非常に透明度が高く、空気に対してもほぼ100%の透過光が得られるが、350 nm以下の波長では急激に不透明になる。従って図 3.4 などミネラルオイルをリファレンスにした透過率のデータは、350 nm付近以下では意味が無い。

3.2.2 酸化防止剤 BHT の効果

ここまでではまだ液体シンチレーターの透過率の低下の原因が酸化によるものであるかどうかはわからないが、そうであると仮定して酸化防止剤として BHT (2-6-Di-tert-butyl-4-methylphenol : 詳細については Appendix A を参照) を液体シンチレーターに混入することで効果があるかどうかを調べてみた。

BHT は水酸基(-OH)をもっており、これが電子一つを放出してラジカル状態になった方が安定であるため非常に酸化されやすい薬品である。つまり自分が酸化されることで周囲の物質の酸化を妨げる特徴があり 1 次酸化防止剤 (ラジカル連鎖禁止) に分類される。BHT は高温でも比較的安定していて以前は食品等の酸化防止のために添加されていたが発ガン性などの危険性から現在ではあまり使用されておらず、一部の接着剤やゴム等樹脂の酸化防止のために使用されている。また非常に安価であり Kg 当たり 200~400 円で購入できる。ちなみに BHT は還元反応を示すような物質ではないので一度劣化した液体シンチレーターを復活させるような効果は期待できない。

測定はサンプルとして BHT を 0.015、0.03、0.2、2.0g/L の濃度で液体シンチレーターに溶かしたものを作成し、前述の劣化の測定の際と同様に 45℃ の恒温槽で 18 ヶ月間保存した。

サンプル

- A : 液体シンチレーター+BHT (0.015g/L)
- B : 液体シンチレーター+BHT (0.03g/L)
- C : 液体シンチレーター+BHT (0.2g/L)
- D : 液体シンチレーター+BHT (2.0g/L)

これらのサンプルについても先と同様に吸光光度計を用いて透過光量比を測定した。Reference は同じくミネラルオイルでセルは Reference、Sample 共に 1cm×1cm サイズのものを使用した。

(測定結果)

各サンプルの測定結果を図 3.6 に示す。

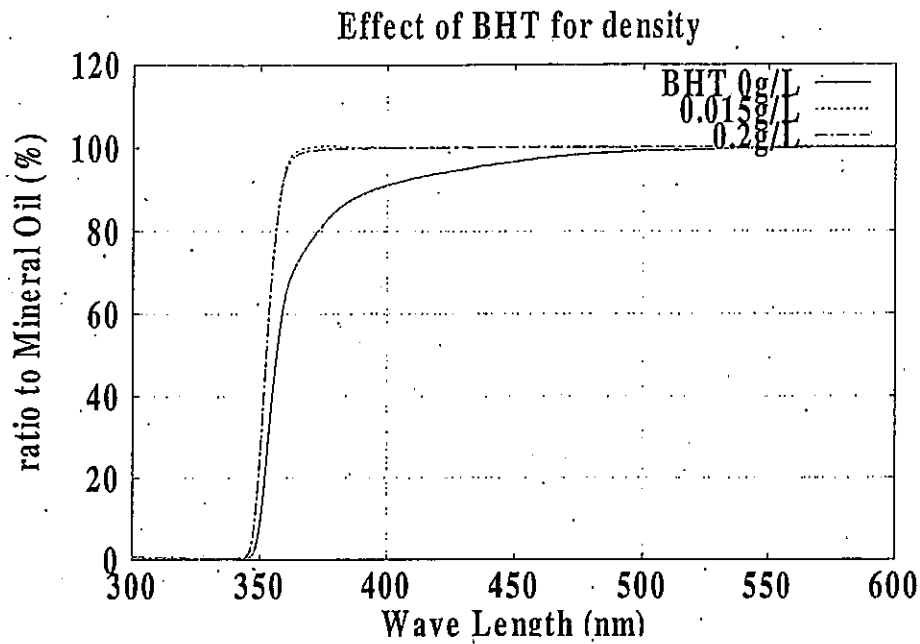


図 3.6_4 5°Cで18ヶ月間保存した液体シンチレーターのBHTの濃度別透過光量比
 リファレンスはミネラルオイル。セルは1 cm。0.03、2.0g/Lについては0.015、
 0.2g/Lのデータと大差がないので省略した。

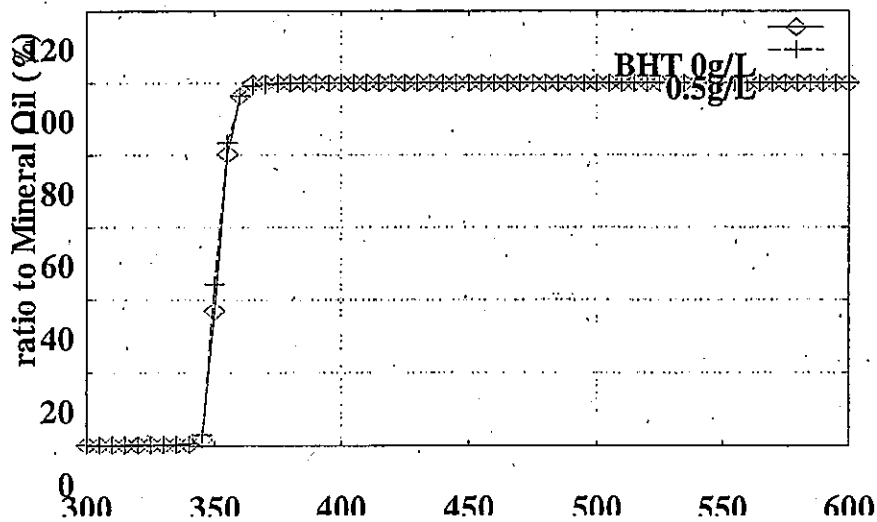


図 3.7_BHTを入れることによる吸光の有無の確認

作成したばかりの液体シンチレーターと、それにBHTを0.5g/L溶かした
 ものとの透過率の比較。図3.6で用いたサンプルを作成直後に測定。セルは
 1 cmでリファレンスはミネラルオイル。少なくとも1 cmの距離ではPPO
 の発光ピークの380 nm付近では吸光は無い。

まず図 3.7 は BHT を 0.5g/L 溶かした液体シンチレーターを恒温槽に保存する前にミネラルオイルを Reference にして測定したもので、BHT による光の吸収がないか調べた。これによると少なくとも 350nm までは吸光がみられず 1 cm の長さでは BHT を混入することによる透過率の低下は無い。(実際の検出器サイズでの検証については後述する)

図 3.6 をみると、BHT を混入させなかったものに対して明らかに透過率の低下が防止されているのがわかる。また今回作成したサンプルの内では BHT の濃度によって酸化防止効果に大差はみられず、また、BHT 自身も PPO と同程度の放射性同位元素を不純物として含んでいることから量はできるだけ少ない方がよく (BHT 内の不純物による影響に関しては濃度が非常に薄いため実際には実験に対して問題にならない)、0.015g/L の濃度で充分効果があると結論できる。

ちなみに更に低濃度でも効果があるかを検証するために下記のサンプルを用意して、今度は 52 度の恒温槽で 4 ヶ月間保存した (これは KamLAND 検出機内では約 3 年半に相当)。

サンプル

- A : 液体シンチレーター + BHT (0.002/L)
- B : 液体シンチレーター + BHT (0.005g/L)
- C : 液体シンチレーター + BHT (0.007g/L)
- D : 液体シンチレーター + BHT (0.01g/L)
- E : 液体シンチレーター

先の測定に比べると保存期間が短く 1cm×1cm のセルでは BHT を入れていないサンプルでもほとんど劣化がみられなかったので Reference、Sample 共に 1cm×10cm のセルを使用した。

測定結果を図 3-8 に示す。

4 ヶ月の保存においても BHT を混入していないサンプルでは 400nm の波長で約 3% 程度の透過光量の低下が見られた。BHT の混入量に関しては 0.005g/L 以上ではほとんど差異がなく先の結果に加えて 0.005g/L の濃度でも充分液体シンチレーターは安定である。

Effect of BHT at Low Density

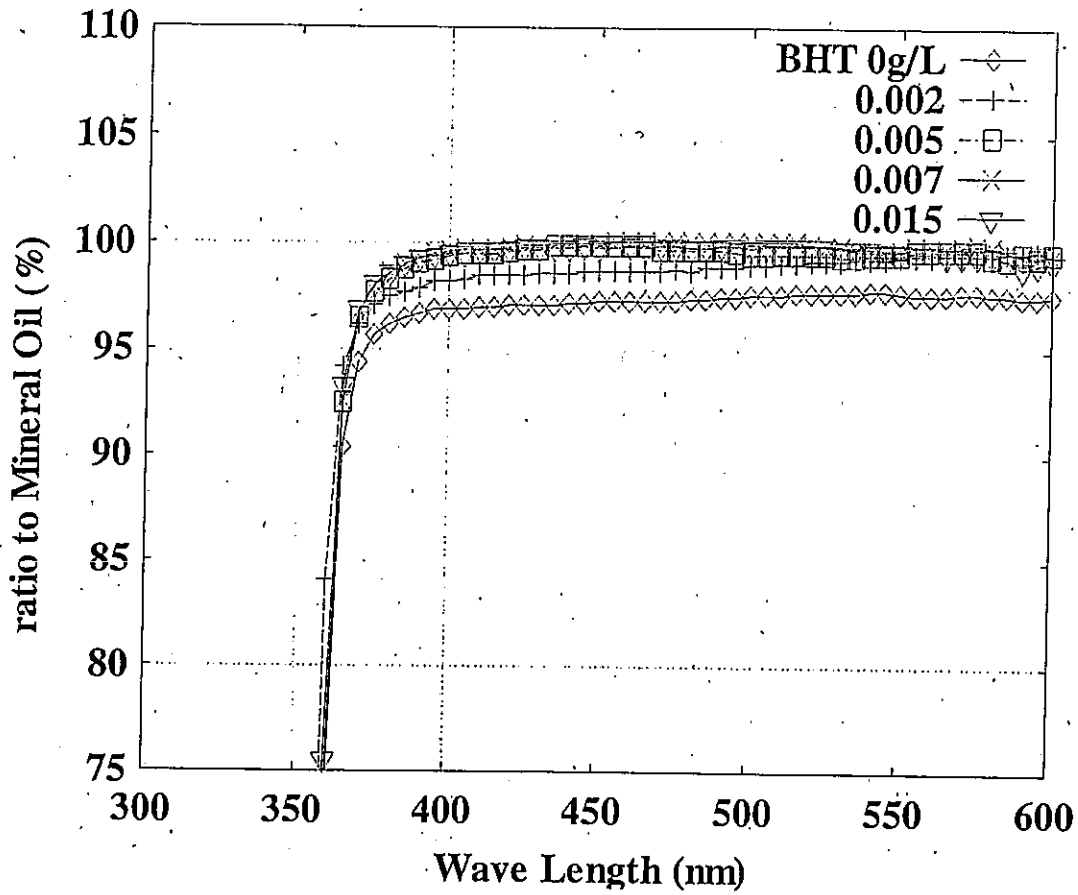


図 3.8 更に低濃度での BHT の効果の検証

図 3.6 の結果に加えて更に低い濃度で BHT の効果を検証。サンプルは BHT を 0、0.002、0.005、0.007、0.015 g/L を液体シンチレーターに溶かしたもので、保存期間は 52℃ で 4 ヶ月間。セルは 10 cm。リファレンスはミネラルオイル。10 cm の距離では BHT を入っていないもので 3% の劣化がみられる。また BHT は 0.005g/L で充分効果がある。

3.3 BHT の使用可能性

BHT を混入することで BHT 自身による光の吸収があると、これが原因でシンチレーション光がクエンチングされてしまう。前述したように 1cm 程度の距離では全く影響がみられなかったが、ここでは実際の KamLAND 検出器の大きさに相当するサイズで検証してみた。

3.3.1 実験装置

KamLAND 検出器内のバルーンの半径は 650 cm であるので、それに対応して 640 cm のアルミニウム製の管を使用して実機サイズでの BHT の吸光効果を調べた。図 3.9 に装置の概要を示す。また図 3.10 に測定に用いた回路のダイアグラムを示す。この管の片側にプラスチックシンチレーター (5 cm × 10 cm、5 cm × 10 cm、10 cm × 16 cm) を設置し、トリプルコインシデンスをとる。この3つのプラスチックシンチレータを宇宙線からの μ 粒子が通過することでトリガー信号が発生し、それに同期してゲートが開き、同じ側にある 5int 光電子増倍管 (HAMAMATSU R1250) でシンチレーションの電荷を、他端の 5int 光電子増倍管で 640 cm の距離を経た上での光子収集量を測定する。また、ここではトリガーカウンターに近いほうの 5int 光電子増倍管をエネルギーカウンター、もう一方をフォトンカウンターと称する。

3.3.2 測定方法

この装置は 2 年前に設置されたもので、2 年間にわたるこの装置での液体シンチレーターの光子収集量のデータがあるのでここで図 3.11 に示した。

図 3.11 をみると少なくとも 2 年間の間では光子収集量が 0.05% の範囲で安定であることがわかる。ここで言う光子収集量とはトリガー 1 イベントに対し平均で何個の光電子が 640 cm 隔てた光電子増倍管の光電面から放出されるかということである。図 3.9 からわかるように立体角が非常に小さいため 1 イベントに対し 0.1 ~ 0.2 個 / トリガーというオーダーである。液体シンチレーターの経時的な劣化により発光量の減少、光子の透過率の低下に伴って光子収集量が減少するわけであるが、この実験方法によりそれらの効果を一括して知ることができる。

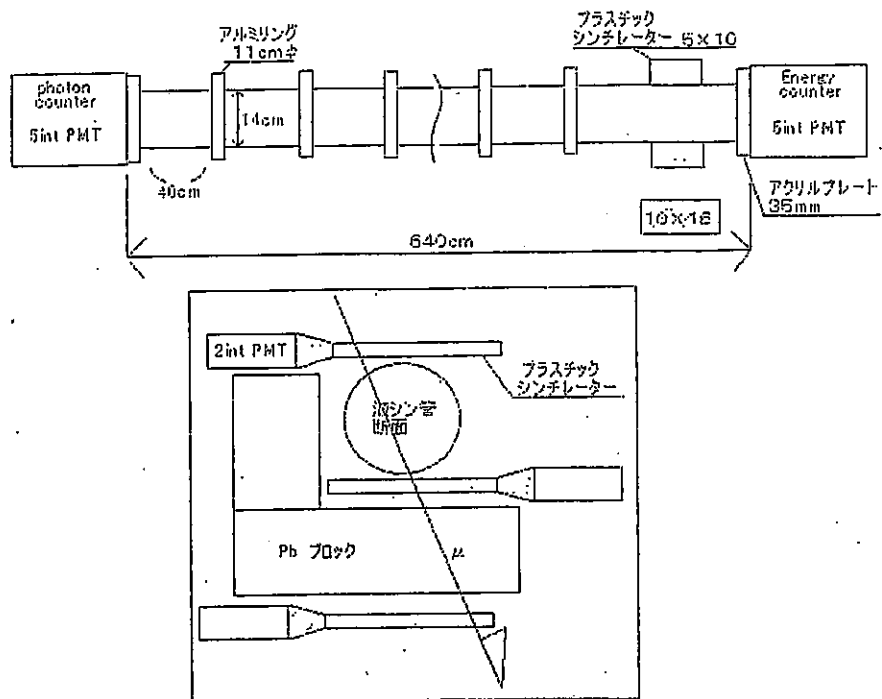


図 3.9_光子収集量測定用装置

上が 6.4m アルミ管の全体図。下はトリガーカウンター設置部の断面図。トリガーカウンターには 5 cm × 10 cm (上、中) と 10 cm × 16 cm (下) サイズのプラスチックシンチレーターを用い、トリプルコインシデンスをとる。間には鉛ブロックがあり、ほぼ μ 粒子以外でトリガーがかかることは無い。トリガーに近い方の PMT は 5 インチでエネルギー (電荷) を測定するものでエネルギーカウンターと称する。他方の PMT はフォトンカウンターと称し、6.4m を経て届いたフォトン

を計数する。

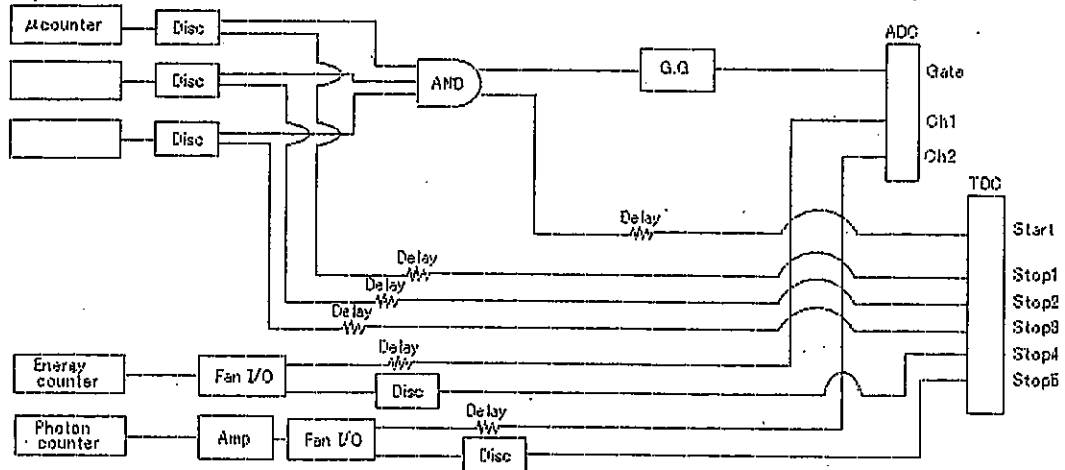


図 3.10 光電子収集量測定における回路図

Long Term Stability of LS

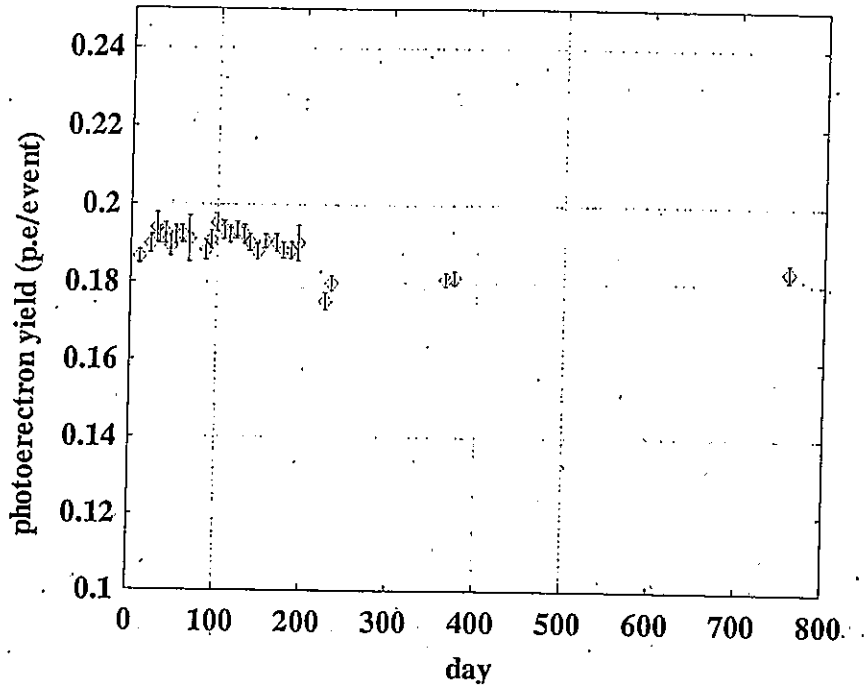


図 3.11 KamLAND 液体シンチレーターの長期安定性

6.4mアルミ管を用いての液体シンチレーターの光電子収集効率の測定。約2年間の測定に対して目立った変化はみられない。従って KamLAND 液体シンチレーターはこの期間に対して安定である。

さて、この装置を用いて BHT の吸光効果を調べるわけであるが、測定としてまず、上記の2年越しの液体シンチレーターを $4m^3$ の窒素（管中の液体シンチレーターの体積の40倍）でパージをして溶存酸素を除去し、BHT を混入しない状態光子収集量を測定した。その後 BHT を $0.005g/L$ 、 $0.01g/L$ 、 $0.015g/L$ の濃度で溶かし込み再び光子収集量を測定した。

サンプル

- A: 液体シンチレーターのみ（窒素パージ済み）
- B: 液体シンチレーター+BHT $0.005g/L$
- C: 液体シンチレーター+BHT $0.01g/L$
- D: 液体シンチレーター+BHT $0.015g/L$

データとしてはまず、トリガーをゲートとしてフォトンカウンター及びエネルギーカウンターに入った信号の電荷をADCで、またトリガー信号をスタート、フォトンカウンター、エネルギーカウンターの信号をストップとして飛行時間をTDCで測定した。もしトリガーによってゲートが開いてもフォトンカウンターまで光子が届かなければTDCのデータはsaturateする。データの評価方法としては、1イベント当たりフォトンカウンターで検出される光子数の平均値を m (~ 0.1) とし、あるイベントに対してフォトンカウンターが計数值 n を得る確率はポアソン分布に従う。一方 $n=0$ の時の確率はエネルギーカウンターでのイベント数に対するフォトンカウンターで検出されなかったイベント数 (= TDCでsaturateしているデータ数)の割合に等しいはずなので、これを用いれば逆に1イベント当たりのフォトンカウンターでの平均イベント数 m が求まることになる。

3.3.3測定結果

はじめにBHTの各濃度で測定結果を図3.12-3.15に示す。図3.2はフォトンカウンターによるADCスペクトルで、one photo peakを表している。図3.13はエネルギーカウンターによるADCスペクトルで宇宙線 μ 粒子による信号のエネルギースペクトルである。そして、図3.14はエネルギーカウンターによるTDCスペクトル、図3.15はフォトンカウンターでのTDCスペクトルである。

トリガーカウンターの設置場所からフォトンカウンターまでの距離は640cmであるので、光子がこの距離を飛行するには、約20nsの時間を要する。従って、TDCのキャリブレーションの結果から、信号は2000ch付近に現れるはずである。図3.15をみると、まず、over flowをしたデータが大部分をしめており、これがトリガーが発生したにもかかわらずフォトンカウンターまで光子が届かなかった場合のデータである。また1500~2500chの間にS/N比は悪いものの、トリガーに対するone photo eventのスペクトルがみえる。

データの解析としては、まず、フォトンカウンターにおけるTDCスペクトルのone photoの信号をGaussianでフィットし、フォトンカウンターまで光子が到達し、かつ光電面で光電子が放出されたイベント数を求める。実際に μ 粒子によってトリガーが発生したイベント数は、このフィットしたGaussianの面積とover flowしたデータのカウント数の和である。従って、これからトリガーが発生してもフォトンカウンターまで光子が届かない、あるいは到達しても光電面での量子効率により光電子が放出されない確率がわかる。すなわち、 n をGaussianの面積、 N をover flowしたイベント数とすると、フォトンカウンターが光子を検出しない確率 $P(0)$ は、

$$P(0) = \frac{N}{n + N} \quad (3.1)$$

となる。一方、トリガー1イベントに対し、フォトンカウンターが x 個の光子を検出する確立 $P(x)$ は、ポアソン分布に従うとし、

$$P(x) = \frac{\lambda^x}{x!} e^{-\lambda} \quad (3.2)$$

ここで λ はトリガー1 イベントに対するフォトンカウンターの検出光子数の平均値である。更に $x = 0$ となる確率は、

$$P(0) = \frac{N}{n + N} = \frac{\lambda^0}{0!} e^{-\lambda} = e^{-\lambda}$$

$$\lambda = -\ln P(0) = \ln \frac{n + N}{N} \quad (3.3)$$

これから、求める値 λ が算出される。各濃度での測定結果を表 3.1 に示す。

BHT 濃度	Light Yield (p.e / trigger)
0 g/L	0.18 ± 0.006
0.0015	0.16 ± 0.006
0.005	0.16 ± 0.007
0.015	0.15 ± 0.006

表 3.1 光電子収集量の BHT 各濃度に対する測定結果

この結果について BHT 0g/L での値を 1 とした相対値に変換してグラフにしたものを図 3.16 に示す。

この結果をみると、10%~15%の光電子収集量の減少がみられるが、誤差の範囲で安定しているといえる。先述した BHT の酸化防止効果の測定では 10 年以上の測定に際して PPO の発光ピークである 380nm 付近では 20%の透過光量の低下がみられた。この測定では 1 cm のセルを用いているので KamLAND の検出器サイズでは更に大きな影響が出るのは確実である。ここで一つ注意しておくが、この実験の測定では、液体シンチレーターを

窒素パージしていないため溶存酸素によるクエンチング、および酸化があるほか、保存に際してはわざと劣化を招いてBHTの効果を見るため外気にさらした状態で保存している。従って、実際のKamLAND検出器内の液体シンチレーターはこれほどの劣化を招くことは無い（KamLAND液体シンチレーターは窒素パージにより溶存酸素を取り除くとともに、直接外気、特に酸素とは接していない）。

さて、BHTを入れることにより測定結果をみる限り、影響があるといってもよいかもしれない。仮に最悪の場合でも液体シンチレーターが酸化によって20%/cmの透過光量の低下を招くことがあり得、またBHTがそれに対しほぼ100%の酸化防止効果があることを考慮すると、BHTはKamLANDでの使用に関して有効であると結論する。

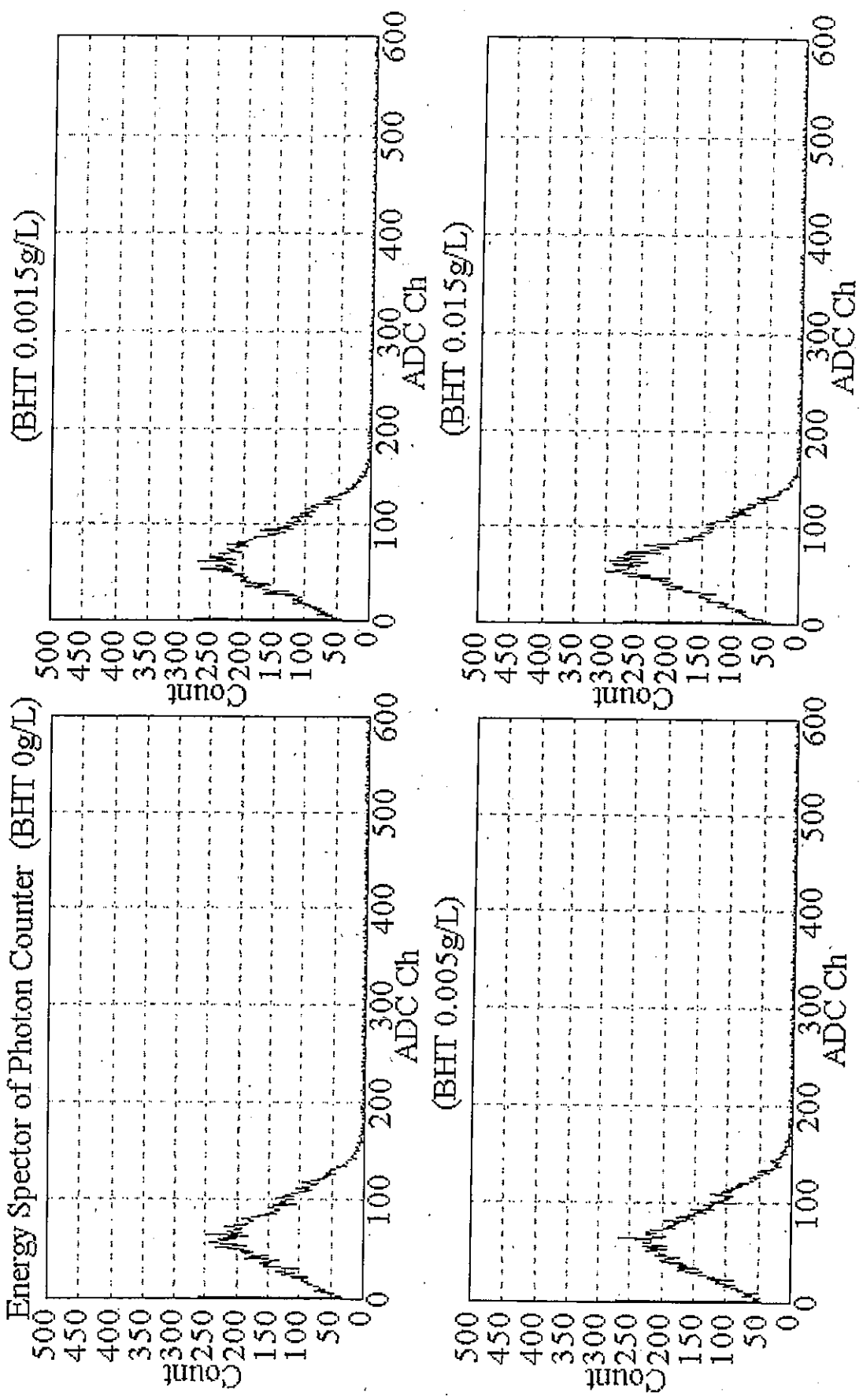


図8.12 フォトンカウンターのエネルギーレスポンス

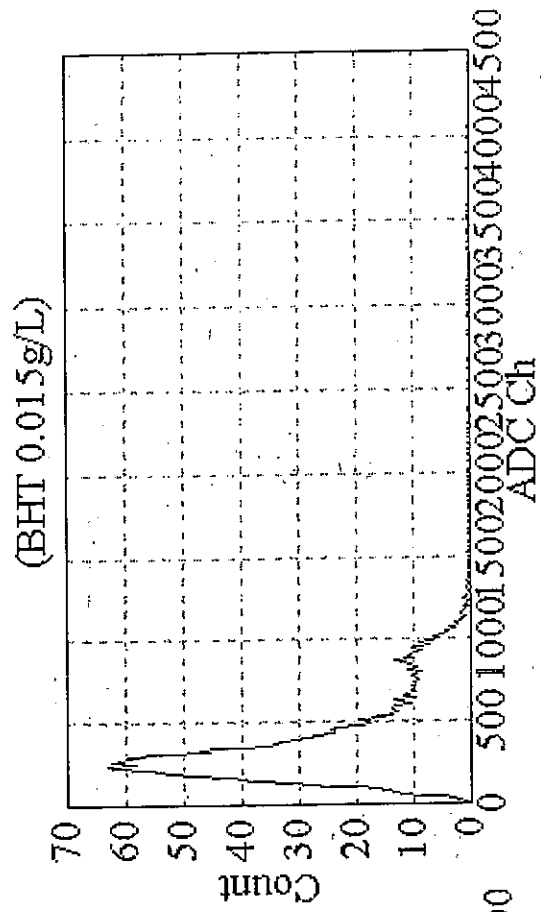
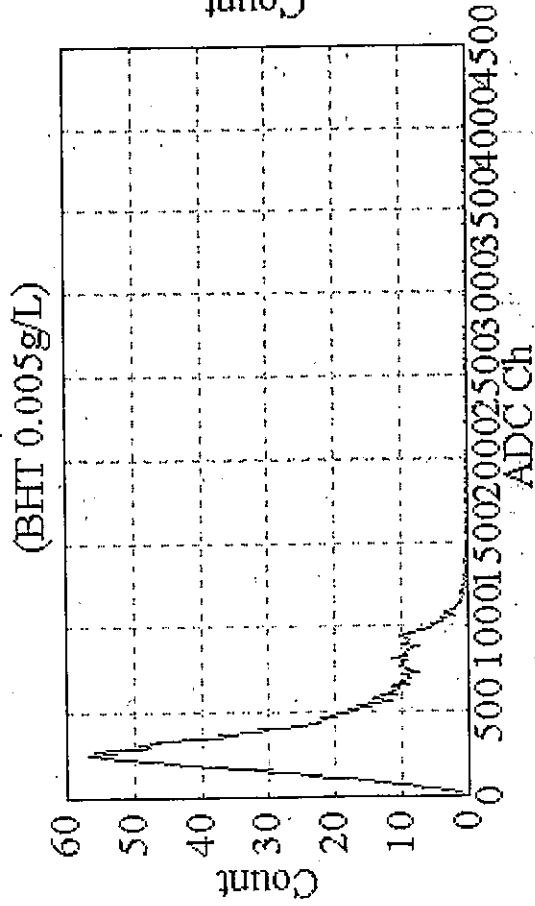
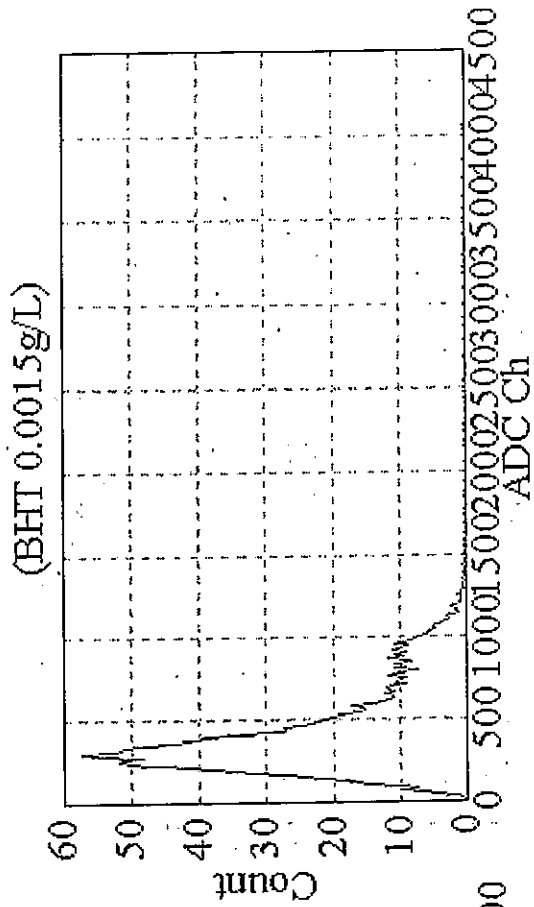
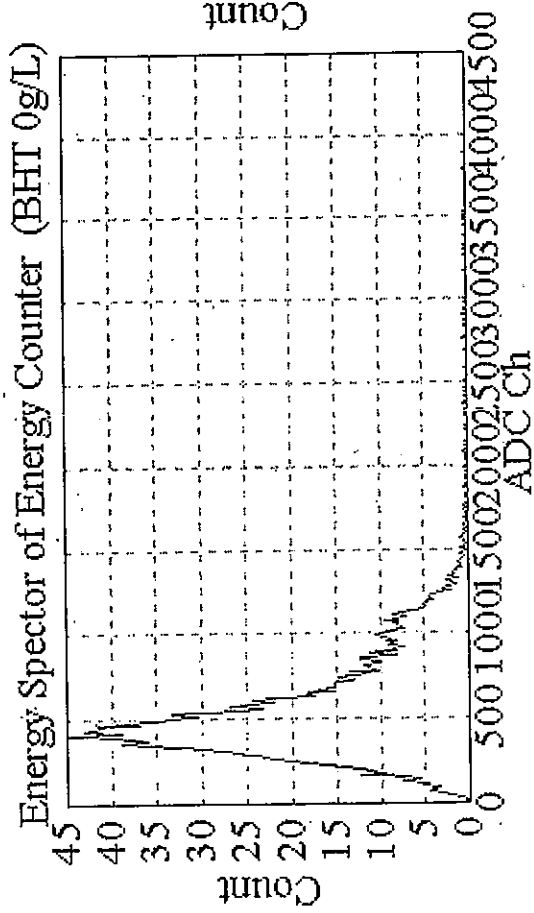


図3.13 エネルギーカウンターのエネルギーレスベクトル

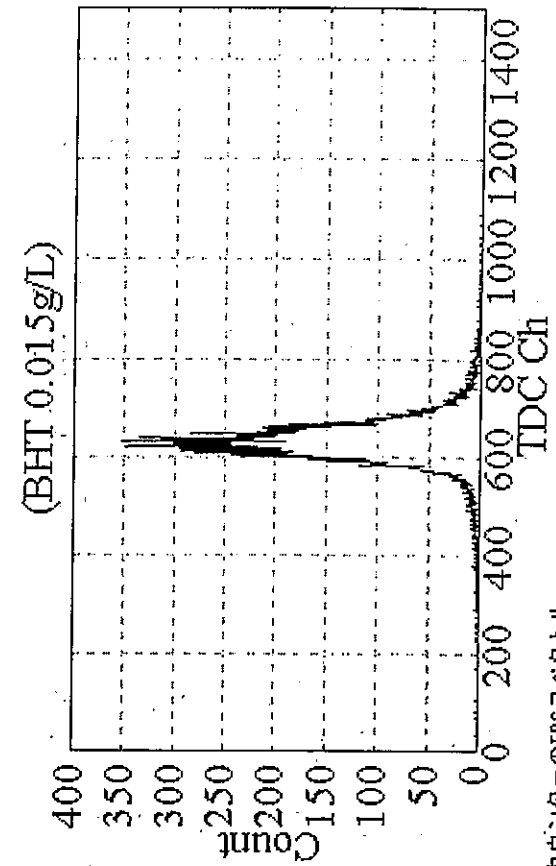
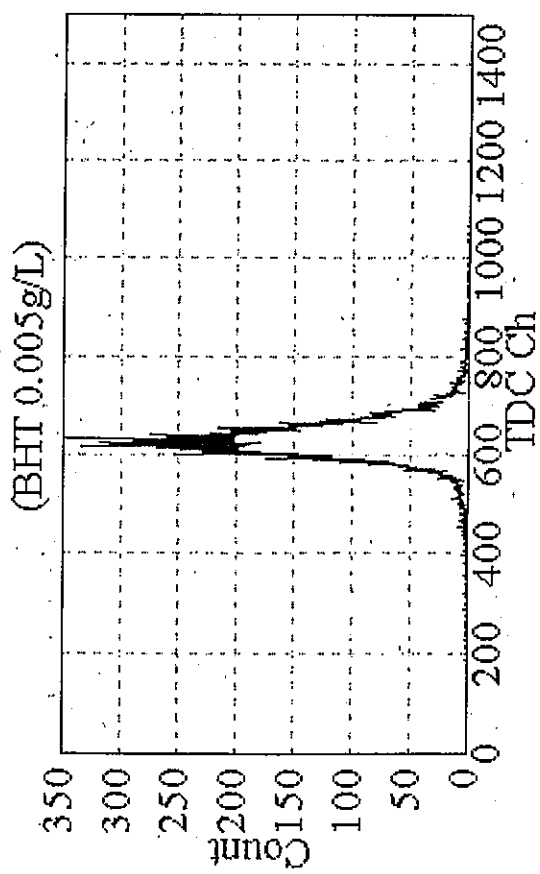
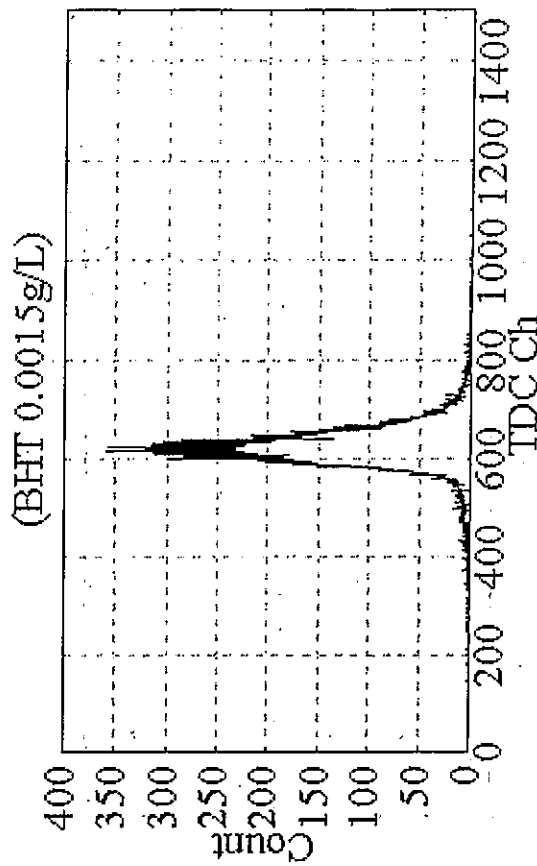
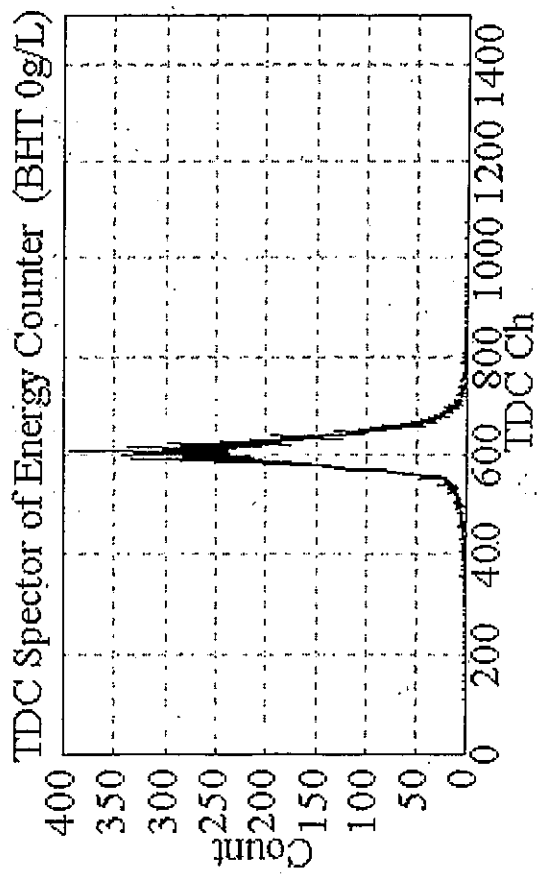


図9.14 エネルギーカーウンターのTDCスペクトル

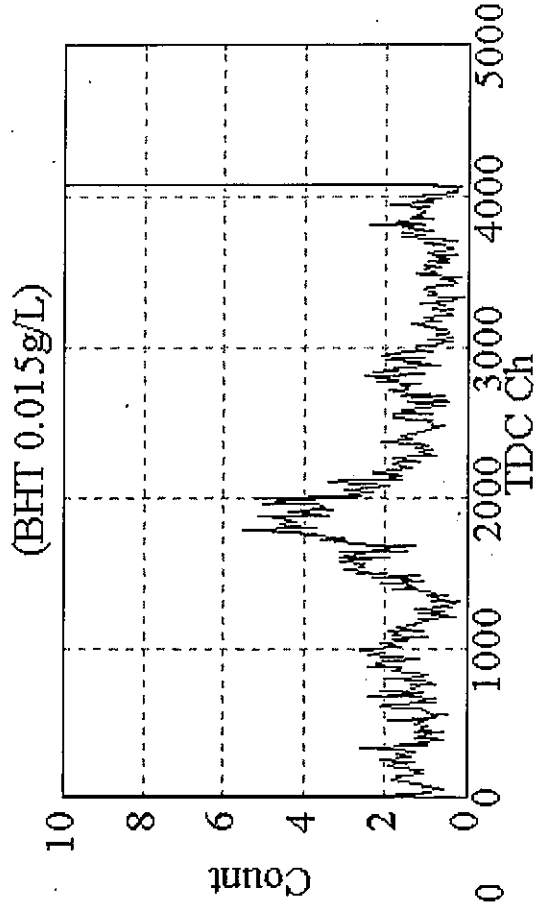
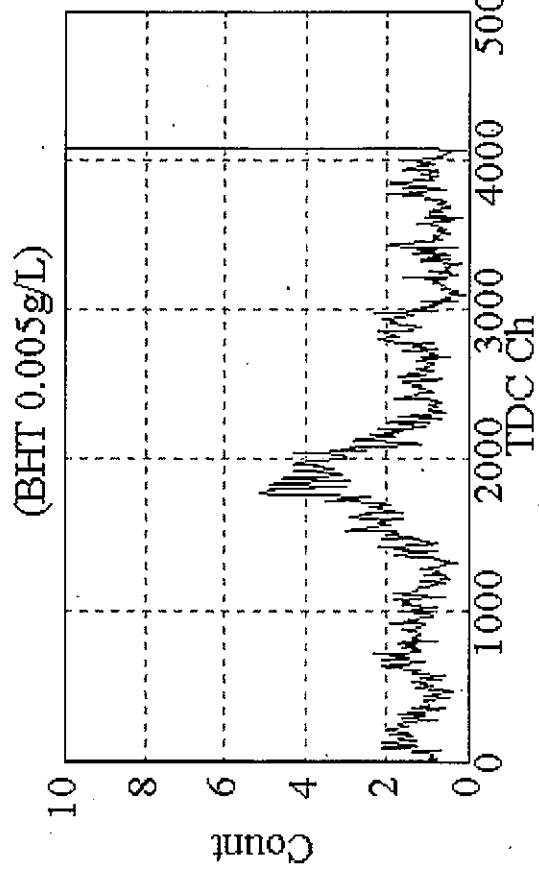
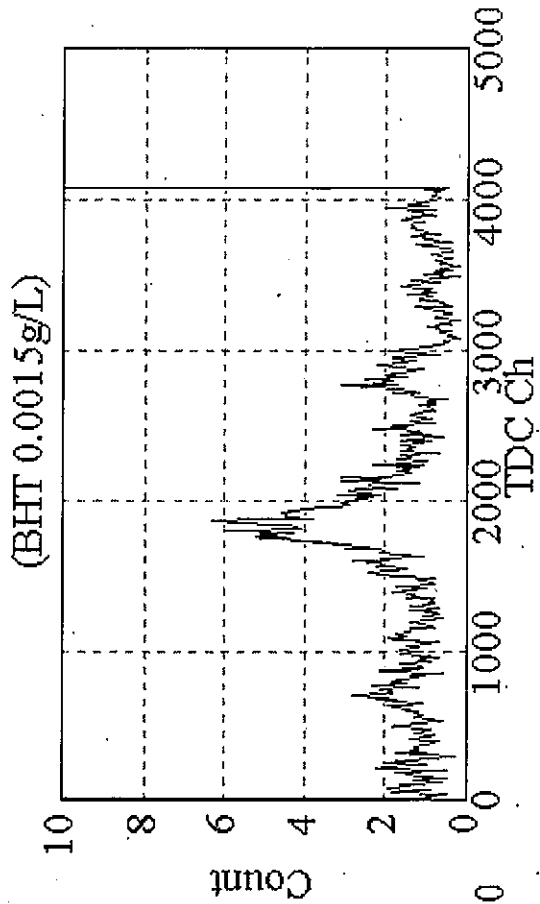
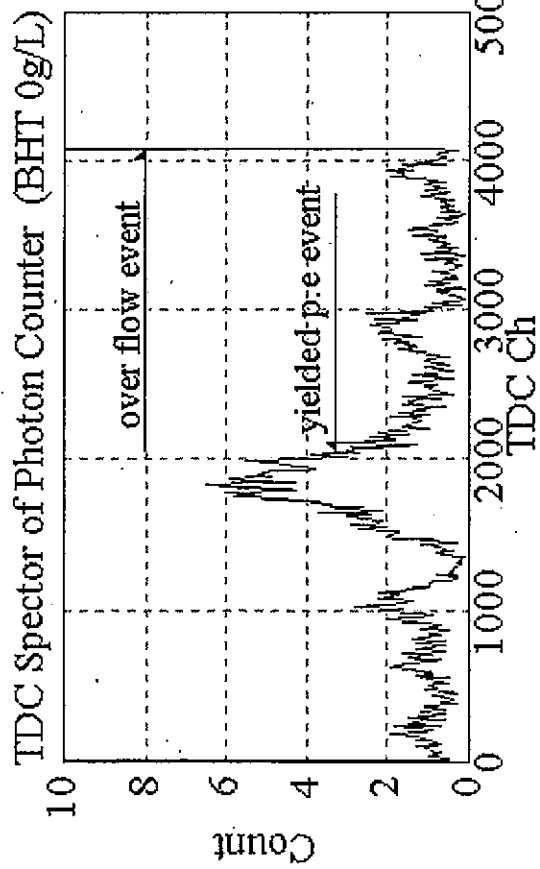


図3.15_ フォトンカウンターのTDCスペクトル

Use Possibility of BHT

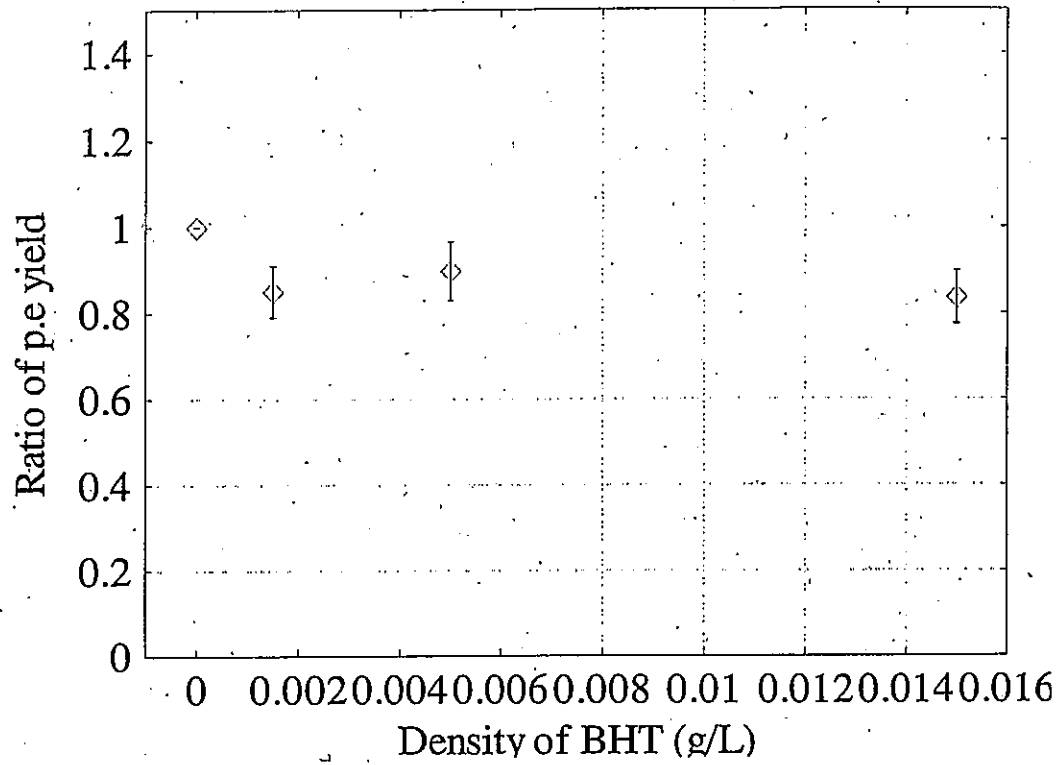


図 3.16_640 cmアルミ管を用いての BHT のクエンチング効果の測定

3.4 結論

(1) KamLAND 液体シンチレーターの長期安定性について

まず、2年間に及ぶ640cmアルミ管を用いての、実機サイズでの光電子収集量の測定から、KamLAND 液体シンチレーターは密封した状態では誤差の範囲で安定であり目立った劣化は無い。

(2) BHT の酸化防止効果

液体シンチレーターを外気(酸素)に晒した状態で使用した場合、最高で10年間では20%/cm、3年間では3%/cmの透過光量の低下がみられた。そして、それに対し、BHTは確実に酸化防止効果があり、10年間分の使用では最低で0.015g/L、3年分では0.005g/Lの濃度でBHTを溶解させればほぼ100%の酸化防止効果が得られた。

(3) BHT の KamLAND 検出器での使用可能性

実機サイズにおけるBHTを混入させることの影響は、640cmの距離を経た上で誤差の範囲で安定であるといつてよい。10%程度の光電子収集量の低下はみられたが、BHTの酸化防止効果の大きさを考えると、KamLANDの使用に関して有効であるといえる。またBHTが含有している放射性同位元素の量はPPOと同程度であり、使用する場合の濃度が非常に小さいことから、これは問題にならない。

KamLANDでは定期的にキャリブレーションを行うので、それによって液体シンチレーターの性質変化について知ることができる。それらを考慮した上で、今後BHTを使用するか否かを決定する。

第4章 水、及びステンレスの 中性子阻止能の測定

KamLANDで検出されるニュートリノの内、原子炉ニュートリノではそのイベントレートが約1~2 event/day と非常に小さく、また ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのエネルギーは861 keVと低エネルギーであるため、環境 γ 線、宇宙線 μ 粒子等のKamLAND検出器内でのイベントレート及びエネルギースペクトルを知っておくことは重要である。これらの他にバックグラウンドとして見込まれるのが中性子である。ニュートリノの測定の原理は第2章でも示したとおりである。すなわち、ニュートリノが液体シンチレーター中の陽子と衝突して陽電子と中性子を生じ、その内、陽電子の対消滅による γ 線(511 keV)をトリガーとして、一方中性子が液体シンチレーター中で陽子を反跳しながら熱中性子化し最後に陽子に捕獲され重水素を形成したときに放射される γ 線(2.2 MeV)の信号を検知することによってニュートリノの反応を識別する。従って検出機内に中性子が入射した場合500 μs のゲート内ではニュートリノによるものと区別ができない。

KamLAND検出器内において中性子源となり得るのは次の場合である。

宇宙線 μ 粒子による中性子の生成

岩盤中に含まれるU, Thの自発核分裂による中性子の生成

宇宙線 μ 粒子は岩盤中の原子核や液体シンチレーター中の原子核と核粉碎反応を起こし新しい核種を生成する。これらの核種はその後 β 崩壊等を起こして電子等とともに中性子を生成する。KamLAND検出器設置場所(地下1000m)での μ 粒子のフラックスは $1.6 \times 10^{-3} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であり、その内検出器内への入射は 0.3 s^{-1} と地表の 10^{-5} 倍まで減少することがわかっている。またKamLAND検出器には最外部に純粹槽を持っていて、ここに設置された光電子増倍管を用いて μ 粒子を観測している。それによって μ 粒子の飛跡に沿って半径1m以内の空間で3秒間のdead timeを設けることで μ 粒子による信号を排除している。従って問題になるのは検出器内部で生成された中性子よりも外部で生成され、内部へ入射してくる中性子の方である。宇宙線 μ 粒子による中性子のKamLAND検出器中でのイベントレートは約0.07 event/dayと予想されている。

一方で岩盤や液体シンチレーター中に含まれるU, Th等の核分裂によっても中性子が生じる。岩盤中に含まれているU, Thの濃度は表4-1のようになっている。

神岡鉱山の岩石	$^{238}\text{U}(10^{-6} \text{ g/g})$	$^{232}\text{Th}(10^{-6} \text{ g/g})$
岩石 1	1.3	0.42
岩石 2	72.2	198

表 4.1 神岡鉱山中の岩石に含まれる U,Th の量

これら全ての中性子による検出器内でのイベントのレートは 0.3 event/day 程度と見込まれている。

しかしここで言う中性子のイベントでは周囲から KamLAND 検出器に入射する中性子数と液体シンチレーター中での反応断面積をもとに計算されたものであるが、検出器を構成するステンレスタンクや純水槽の水による中性子の遮蔽効果についてははっきりとしたデータは無い。そこでこの章では KamLAND 検出器を構成しているものと同様のステンレス板、及び水の中性子阻止能についての実験に関して述べる。

4-1 実験の概要

中性子の阻止能の測定に際して中性子源として Am/B e を用いた。図 4-1 に Am/B e からの中性子の放出機構を示す。この線源は 3.7 MBq のレートで α 崩壊し約 5.4 MeV の α 線を放出する。これが B e 原子核に衝突すると捕獲され、炭素 12 の励起状態を形成するとともに中性子を放出する。この衝突する確率が 10^{-5} のオーダーであり従って Am/B e からの中性子の放出頻度は約 30 Bq 程度である。

一方で励起状態にある炭素原子はいずれ基底状態に落ちその際 4.43 MeV の γ 線を放出する。この実験ではこの 4.43 MeV γ 線による信号を NaI 検出器で測定し、トリガーとして利用する。

Am/B e 線源から放出される中性子のエネルギーは 4~8 MeV と広がりを持っている。中生子による信号は液体シンチレーターで検出するのだが、線源と液体シンチレーターとの間に一定の距離間隔を開け、その間の中生子の飛行時間を測定すれば、この中生子のエネルギーが求まる。更に線源と液体シンチレーターとの間に減速体として水、ステンレス板を置き、4.43 MeV γ 線の信号数と中生子の信号数との比を求めることで各物質の中生子に対する阻止能を算出する。

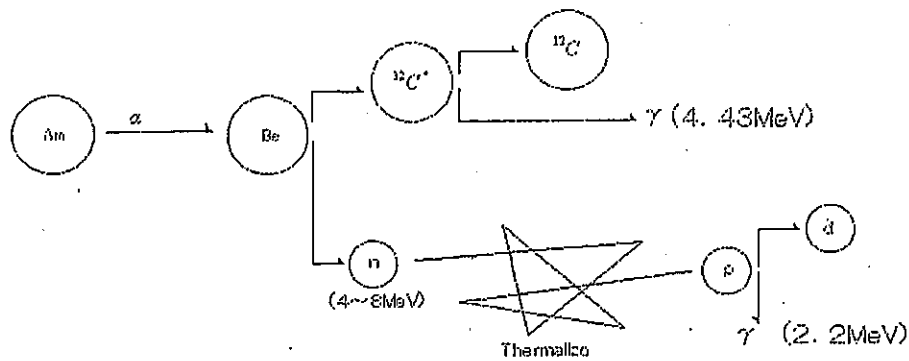


図4.1_Am/Beからの中性子、4.43MeV γ 線の放出機構

4-2 実験装置

はじめに図4-2に実験に用いた装置の全体図を、図4-3に回路図を示す。以下これらの装置について説明する。

まず、検出器は2つのNaIシンチレーターと液体シンチレーターBOXからなる。NaIはAm/Beが中性子を放出する際同時に出る4.43MeVの γ 線を検出するためのトリガー用検出器として使用する。2つ使用するのは線源が γ 線、及び中性子を放出する頻度が30Bqと非常に低いため、立体角を増やしレートを稼ぐためである。NaIシンチレーターのサイズはそれぞれ半径2.5cm \times 7cmの円筒形、5cm \times 5cm \times 30cmの角柱形のものを使用している。これに2int光電子増倍管(HAMAMATSU R239-02)を装着させ γ 線を検出する。NaIの信号に対してはスレッシュホールドとVETOをかけており3MeV \sim 4MeVにウィンドウを絞ってある。またNaIシンチレーター中に中性子が入り込んでも水素原子が無く、またNa、I原子核ともに核内の束縛エネルギーが大きいため陽子を反蹴しシンチレーター中を飛行させることは稀である。Am/Be線源はこのNaIシンチレーターの表面に設置されている。

これらトリガーカウンターから1mの距離を隔てた場所に1辺25cmの立方体形アクリル製BOXが設置されていて、この内部に液体シンチレーター(KamLANDで実際に使用するものと同じもの：ノルマルパラフィン80%+プソイドクメン20%+PPO 1.5g/L)が満たしてある。そしてこのBOXの表面には8int光電子増倍管(HAMAMATSU H5912)が向かい合うように接着されている。

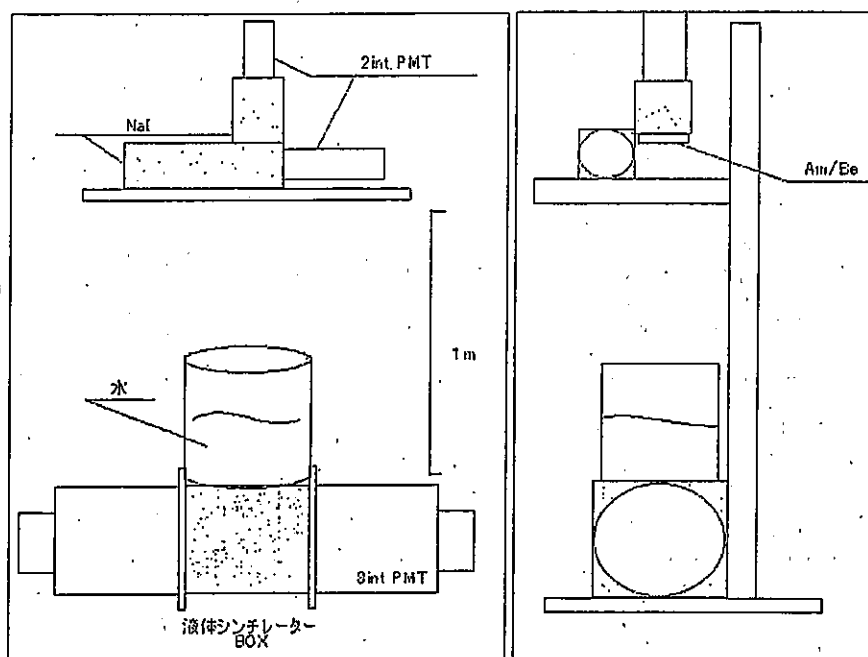


図 4.2_中性子測定用装置の全体図

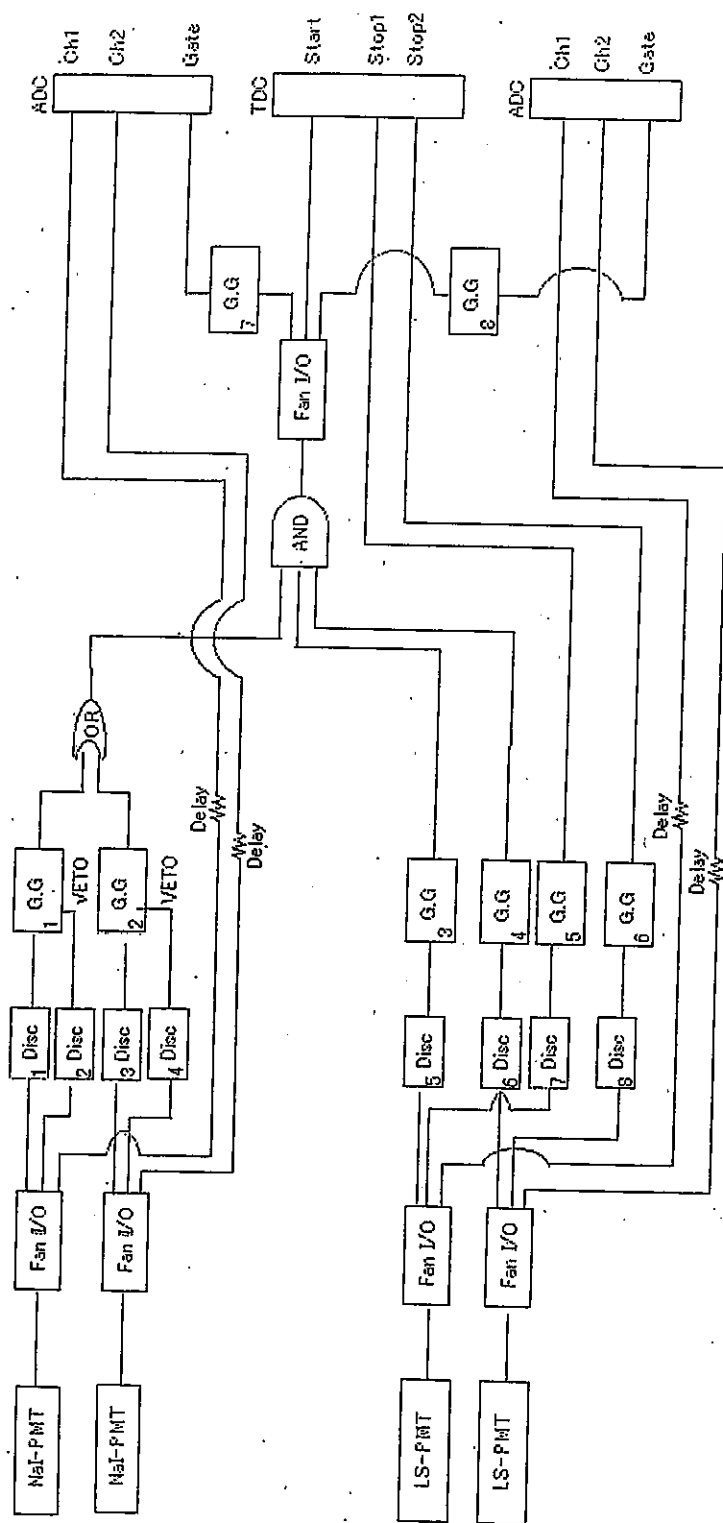


图 4.3 回路图

中性子自体は電荷を持っていないので液体シンチレーター中に入射しても直接シンチレーション光を発光させることは無く、溶液中の陽子を反跳し、荷電粒子であるこの陽子が液体シンチレーター中を走り回ることによって発光が起こる。従って液体シンチレーター中には自由な陽子、つまり水素原子が多いほどいいわけだが、KamLANDで使用する液体シンチレーターは大部分がノルマルパラフィン($N_{12}:C_{12}H_{26}$)で占められているので水素原子数が多く効率的に中性子を検出できる。

Am/B^e線源から出た中性子のうち液体シンチレーターBOXに入射したものについては確実にシンチレーター中の陽子と反応して検出され、取りこぼしを抑えるためには、BOXの大きさが少なくとも中性子の液体シンチレーター中での平均自由行程よりも大きくなければならない。ちなみに液体シンチレーターの密度は約0.8 g/Lで、水素、炭素原子数比は $R_{H/C} \approx 2$ である。また図4-4, 4-5に中性子の水素原子に対する弾性散乱の断面積を示す。これらより中性子の液体シンチレーター中での平均自由行程は5 MeVの中性子で5 cm程度と概算できる。BOXの大きさは25 cmであるので入射した中性子に対してはほぼ信号を取り出せることになる。

一方で線源とBOXの間には1 mの距離があるため立体角は非常に小さくNaIシンチレーターの有効立体角を含めて考えると中性子のイベントレートは500 event/dayと見込まれる。

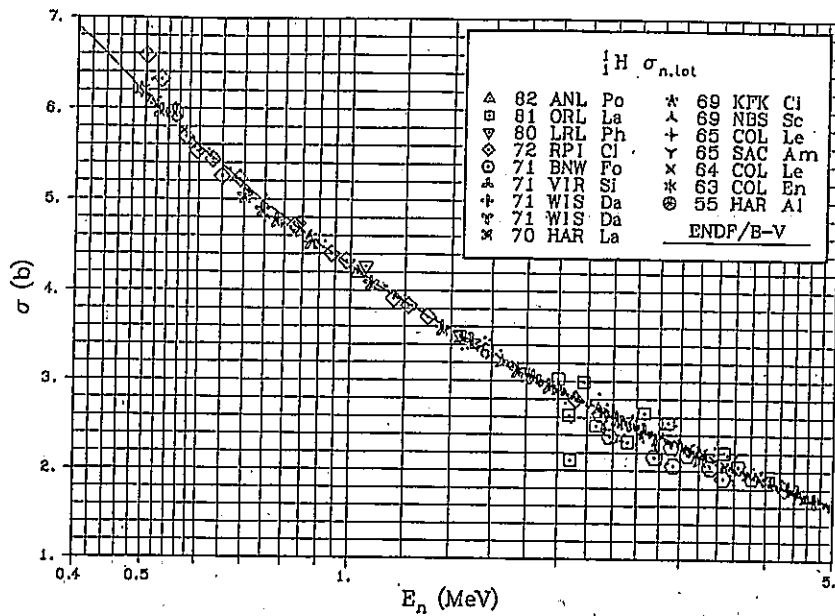


図 4.4 中性子の水素原子に対する散乱断面積 (~5 MeV)

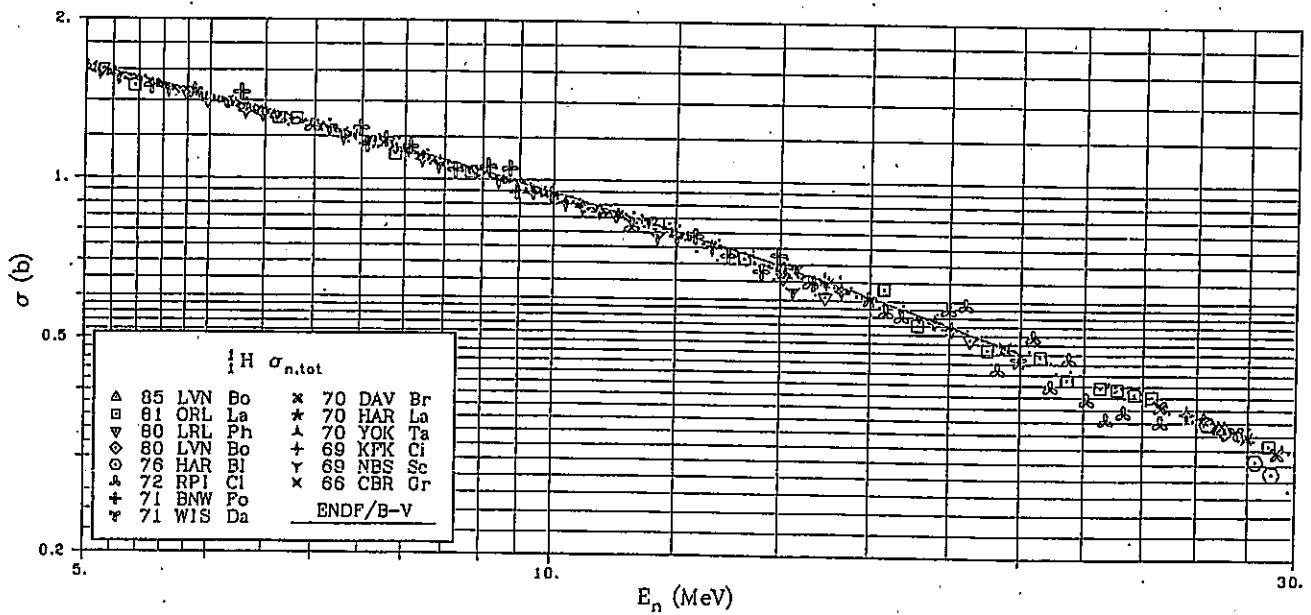


図 4.5 中性子の水素原子に対する散乱断面積 (5 MeV ~ 30 MeV)

4-3 測定方法

Energy(keV)	count/hour
100-500	$3.62 \times 10^5 \pm 134$
500-750	$4.04 \times 10^4 \pm 45.0$
750-1000	$2.44 \times 10^4 \pm 34.9$
1000-1250	$2.02 \times 10^4 \pm 31.8$
1250-1500	$1.64 \times 10^4 \pm 28.6$
1500-2000	$5.21 \times 10^3 \pm 16.1$
2000-2700	$3.97 \times 10^3 \pm 14.1$
2700-3000	112 ± 2.4
3000-4000	278 ± 3.7
4000-5000	162 ± 1.3
5000-6000	132 ± 1.2
6000-7000	111 ± 1.1
7000-8000	97.1 ± 1.0

表 4.2 実験場所（東北大物理 C 棟）でのバックグラウンドの計数

はじめに各光電子増倍管からの信号の処理について説明する。まず NaI からの信号は 2 つのディスクリミネーターにおいてスレッシュホールド 85 mV、200 mV をかけ矩形波に変換しゲートジェネレーターの IN、VETO に入力する。これによって NaI からの信号は 3 ~ 4.5 MeV の間に Window を絞られることになる。表 4-2 を見ればわかるように実際に実験をした場所では環境 γ 線は Tl の 2614.6 KeV が最高であり、それ以上のエネルギーではバックグラウンドのレートは少ない。おそらく NaI で捕らえられるバックグラウンドは宇宙線 μ 粒子かそれによるシャワーのみであると思われる (μ 粒子によるイベントは速度から TDC のデータを用いて判別可能である)。

この実験では NaI を 2 つ使用しているので 2 つの信号の論理和をとって 4.43 MeV γ 線がどちらの NaI に入ってもデータがとれるようにする。

一方液体シンチレーターからの信号についてはディスクリミネーターにおいて 70 mV のスレッシュホールドを設定し約 100 KeV 以上のシグナルを取るようにしてある。中性子が液体シンチレーター中でシンチレーション光を発光させた場合のクエンチングの程度は

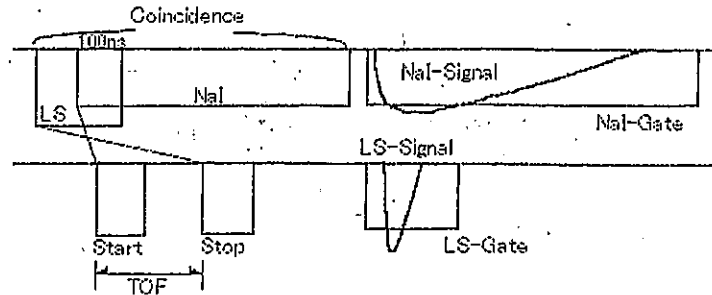


図 4.6_各パルスのタイミング

NaI と LS のパルスについてコインシデンスをとる場合、中性子の飛行時間分 (30 ns) だけ LS の信号が遅れるはずである。すると TDC の START 信号はコインシデンスの OUT を用いているため、結局 LS の信号に同期してしまう。そこで、この実験では NaI の信号を LS よりわざと遅らせ、LS の信号の後ろ 100 ns が重なるように調整してある。

現在よく知られていないが、大体 1/10 程度と予想されている。線源からの中性子のエネルギーは 4~8 MeV なので、実際液体シンチレーターで検出されるスペクトルは最大で、 γ 線でキャリブレーションした場合の 400~800 KeV 辺りに出ると思われる。

ディスクリミネーターを通過した液体シンチレーターの信号は先程の論理和をとった NaI の信号と同時計数をとる。これによって出力される信号が ADC のゲート、及び TDC のスタート信号になる。TDC では NaI の信号と TDC の信号との間の時間差をとるのであるが、そのためには TDC のスタート信号は常に NaI の信号と同期していなくてはならない。5 MeV の中性子でその飛行速度は光速の 1/10、つまり 3 cm/ns であるので、1 m の距離を飛行するには約 30 ns の時間がかかる。従って NaI の信号より液体シンチレーターの信号の方が遅れ、同時計数回路からの出力は後の信号、つまり液体シンチレーターの信号に同期してしまう。この対策として論理和をとった後の NaI の信号をわざと遅延させ、液体シンチレーターの信号 (Width: 200 ns) の後ろ 100 ns と NaI の信号 (Width: 1 μ s) の前部分が重なるように調節した (これは回路系に 4 つの光電子増倍管からの信号が同時にいった場合の話である。調整にはクロックジェネレーターを用いた)。図 4-6 にこれらのパルスの時間的な関係を図示する。

こうして中性子の飛行時間を計測するとともに、ADC で NaI 及び、液体シンチレーターの信号のエネルギースペクトルを計測することでデータの判別を行う。

4.4 タイミングの較正

前述したようにこの実験ではTDCによる中性子の飛行時間の測定がデータ評価の重要な判断材料になる。また、飛行時間の値から中性子がもともと何MeVのエネルギーを持って線源から飛び出したのかも判別できる。この時間情報についての較正に関して述べる。

実験で用いたTDCは500nsまでの時間を計測可能で120psの時間分解能を持っている。データは12bitで転送されるためチャンネルは0~4095chまでであり、1nsは約8chと予想される。そこで実際にTDCのチャンネル数と信号の時間差との関係を測定した。方法としてはクロックジェネレーターからの信号をFan I/Oで4分割し、それを本来各光電子増倍管からの信号を入れるFan I/Oのinputに入力した。この際、液体シンチレーター側のinputに入力する前に、Delayを通し信号をNaI側に比べ0, 15, 30, 45, 60, 75ns遅らせてある。これによるTDCのスペクトルを図4-7に示す。また、これを用いてキャリブレーションした結果を図4-8に示す。この直線の傾きにより8.12ch/nsと求めた。また回路による時間分解能(回路による時間の誤差)は $\pm 1.5ch = \pm 190ps$ であった。

実際の測定では各光電子増倍管に同時に光子が入射しても、光電子増倍管固有のTransit-Timeの差やアノードの立ち上がり時間の差によって、回路に信号が辿り着くまでに時間差が生じる。そこで γ 線源である ^{60}Co を用いて光電子増倍管を含めた全測定系でのTDCスペクトルの零点を求めた。NaIをBOXの上に置きその間に線源を置いてCoからの γ 線の同時計数をとる。Coからは同時に2本の γ 線(1173.2KeV, 1332.5KeV)が出るが、このうち一方が液体シンチレーターBOX、他方がNaIに入射したときのみ計数するわけである。液体シンチレーターBOXのサイズからするとガンマ線が入射して光電面から光電子を放出するまでに要する時間は平均で0.8nsであるので想定結果から求めた値を補正する必要がある。図4-9に測定結果を示す。これよりTDCスペクトルの零点を 401.2 ± 17.0 と決定した。スペクトルに広がりがあるのは光電子増倍管のT. T. Sによるバラツキと、 γ 線がBOX中のどこで発光させるかによって光路差が生じるためである。

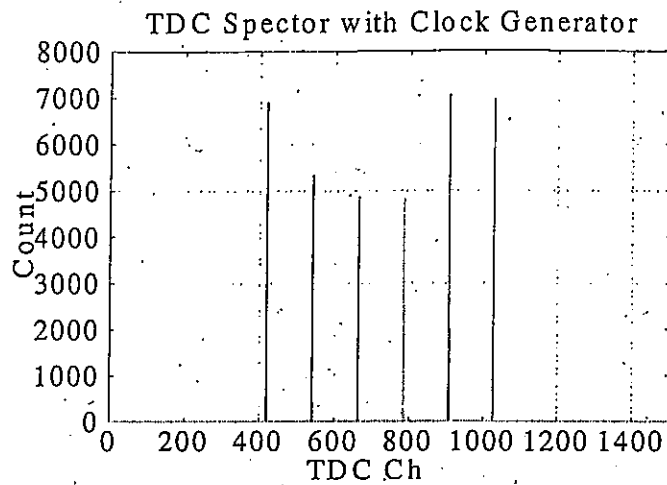


図 4.7_クロックジェネレーターを用いた TDC の較正
 グラフは左から Delay Time=0,15,30,45,60,75ns

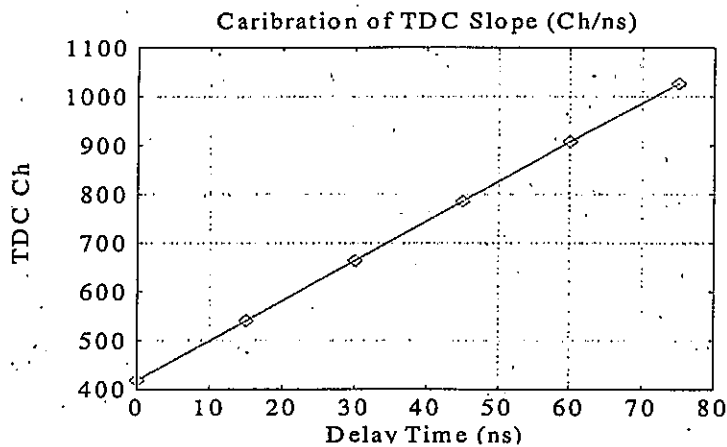


図 4.7_TDC の時間較正直線

この傾きから Delay Time 1ns 当たり 8.1Ch と決定。

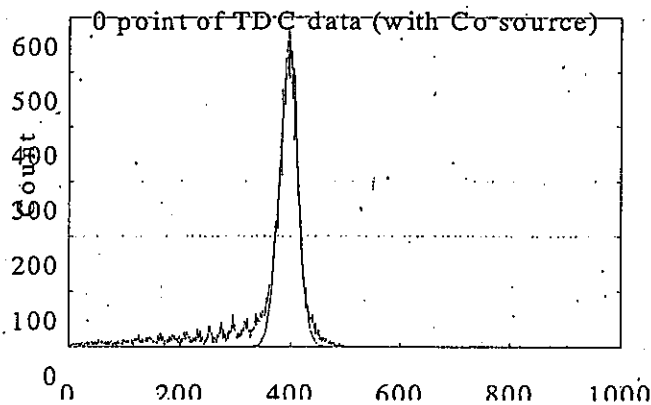


図 4.9_Co を用いた TDC 零点 の測定

これより、PMT に同時に信号が入射した場合の TDC Ch は 401Ch と決定した。

4.5 エネルギー較正

次にNaI、液体シンチレーターのスペクトルに対するエネルギーキャリブレーションの結果を示す。ここでNaIに装着された2int光電子増倍管に与えた高電圧は1250V、1562Vで、液体シンチレーター側の8int光電子増倍管は1451V、1562Vである。キャリブレーション用の γ 線源としては ^{137}Cs (661.7KeV)、 ^{60}Co (1173.2KeV、1332.5KeV)、 ^{207}Bi (569.7KeV、1063.0KeV)である。NaIに対してはこの他にAm/Beからの4.43MeV γ 線も用いた。

まずはじめにNaIでの各線源のスペクトルを図4-10に示す。これによりNaIのエネルギーとADCのチャンネルの関係は、

$$E(\text{KeV}) = 2.1 \times \text{Ch} - 183.5$$

と求まった。

液体シンチレーターについては図4-11(これは水に対する各吸収曲線であるが液体シンチレーターでも水でも水素：炭素(酸素)～2：1であり、酸素と炭素では原子番号も近いことから代用した)に示すように150KeV以上では光電効果による吸収係数は殆ど0に近く、測定に用いたBOXの大きさ程度ではスペクトルで光電ピークは見られない。従ってキャリブレーションはコンプトンエッジ、

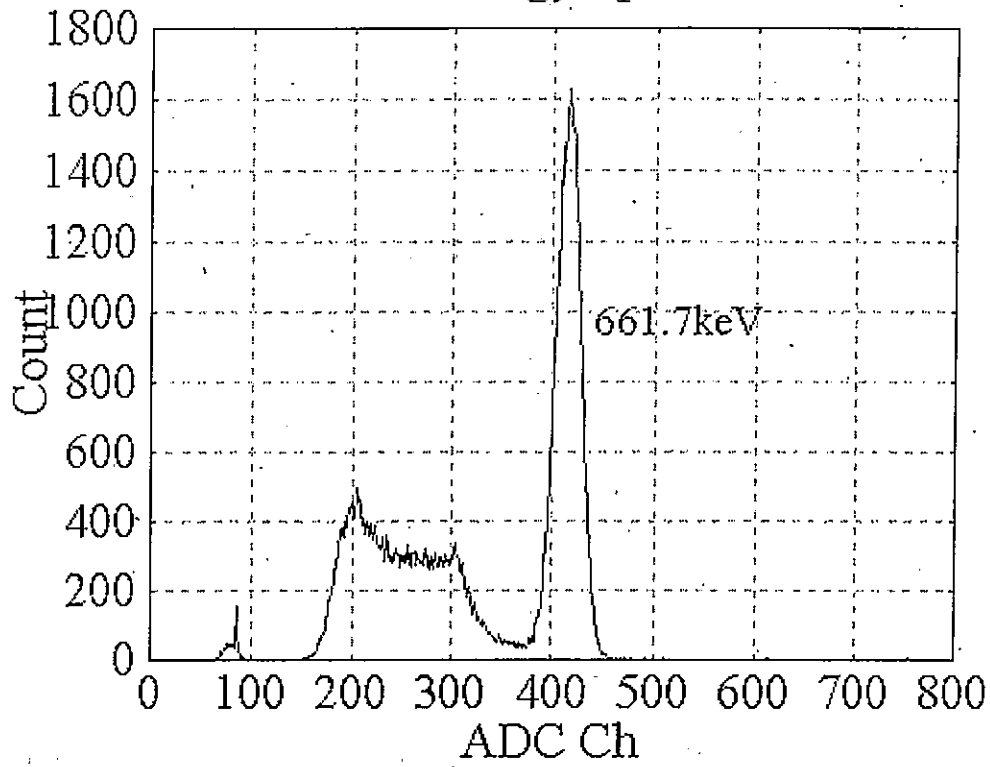
$$E_{\text{max}}(\text{KeV}) = \frac{2E_{\gamma}^2}{2E_{\gamma} + 511(\text{KeV})}$$

を用いた。ここで液体シンチレーターで得られた各線源のスペクトルと較正直線を図4-12に示す。これにより液体シンチレーターでのエネルギーとADCのチャンネルの関係は、

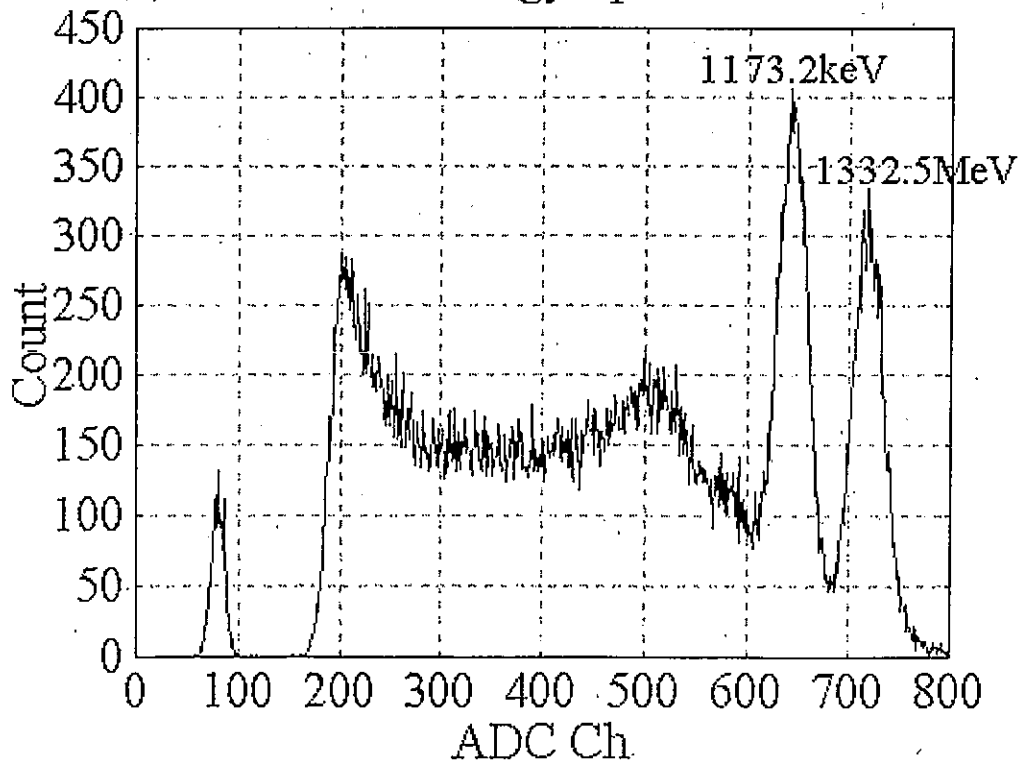
$$E(\text{KeV}) = 0.92 \times \text{Ch} - 139.6$$

と求まった。

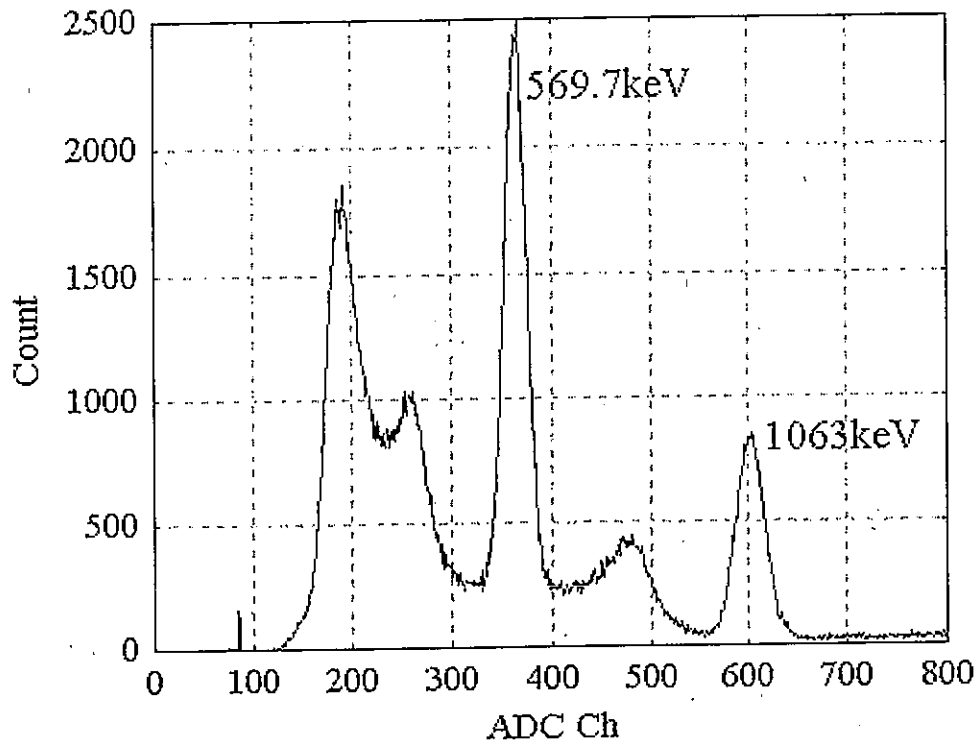
Cs Energy Spector



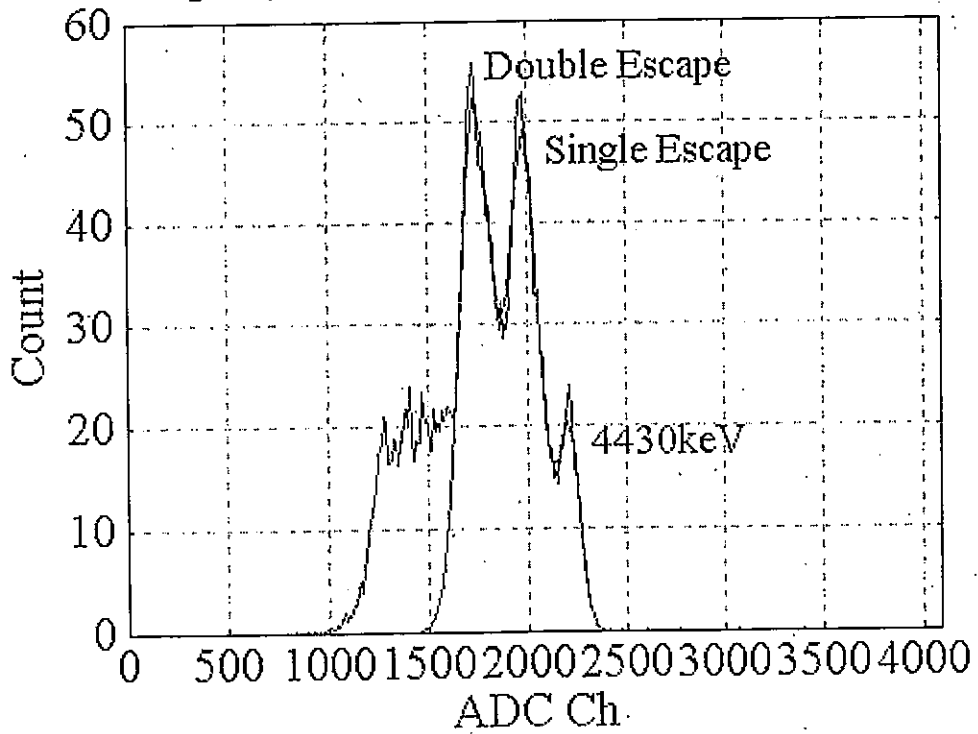
Co Energy Spector

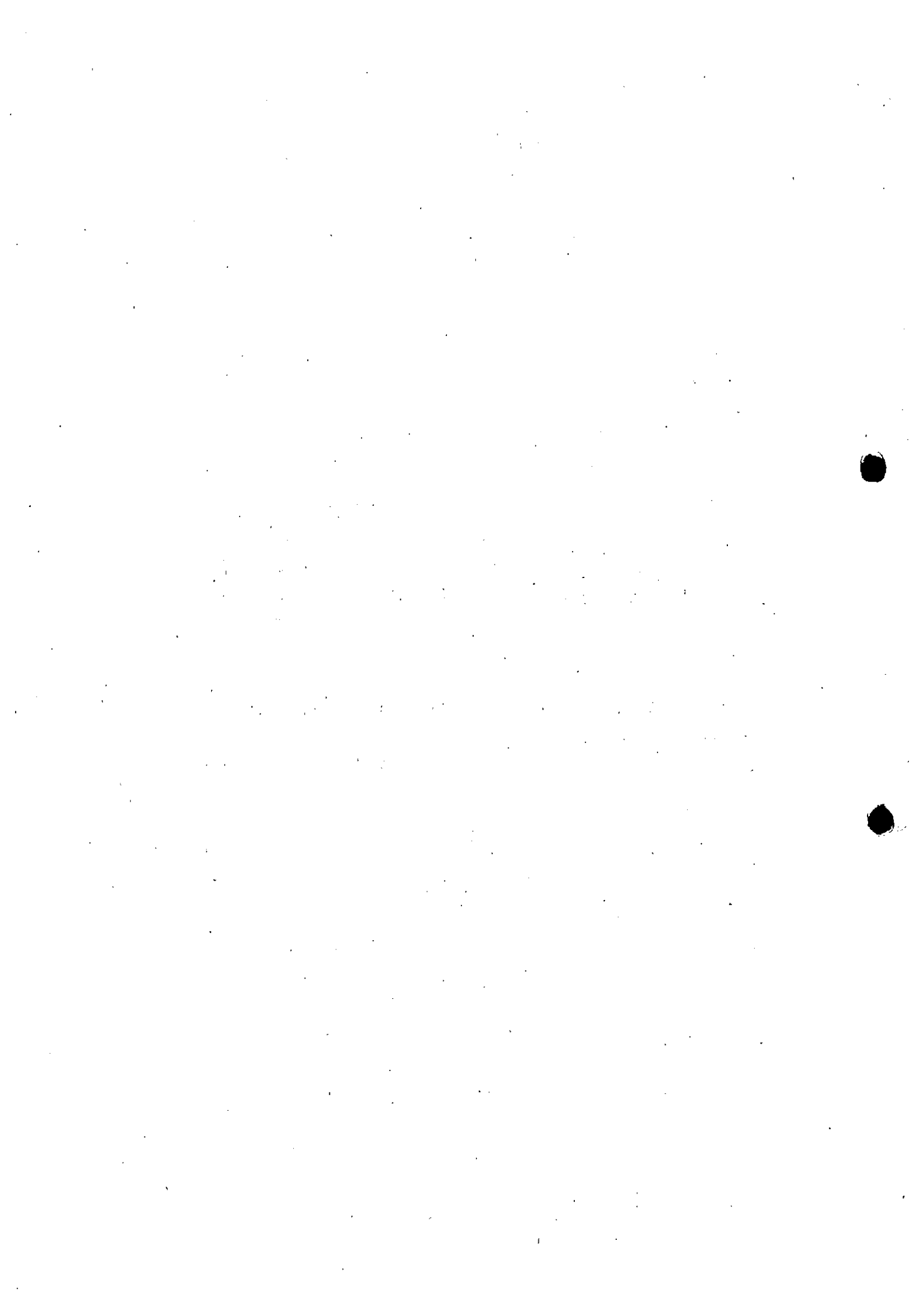


Bi Energy Spector



Triger (Am/Be 4.43MeV Gamma) Spector





Caribration Line of NaI Scintillator

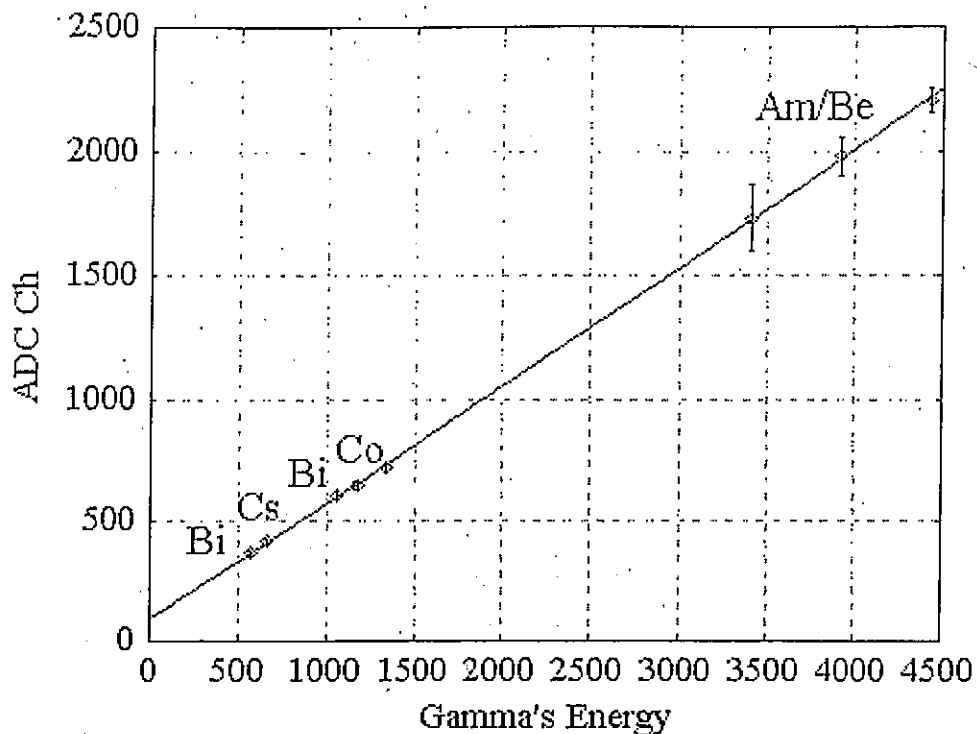


図 4.10_NaI シンチレータの各エネルギースペクトルと校正直線

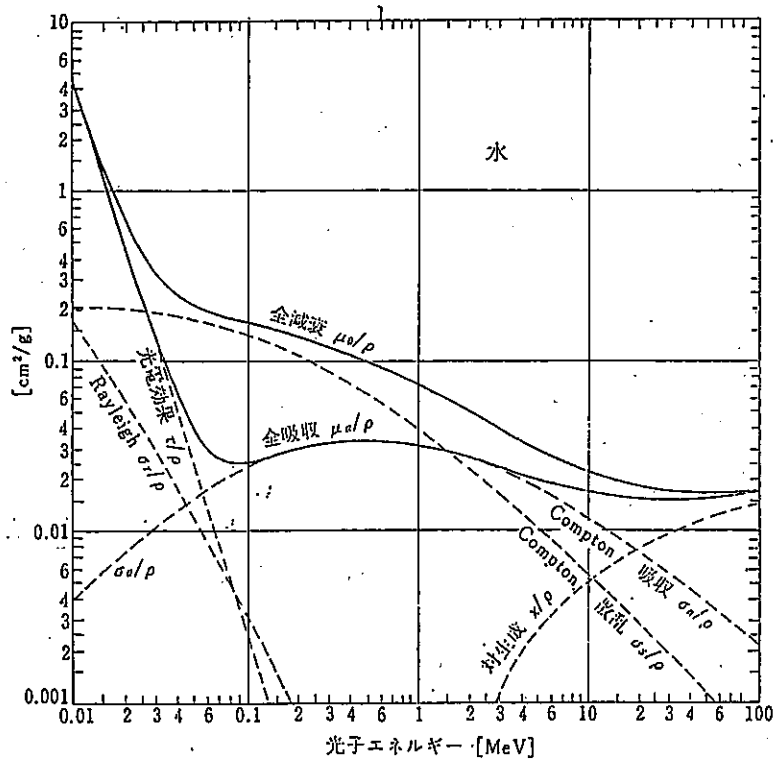


図 4.11_ γ線の水中での吸収係数

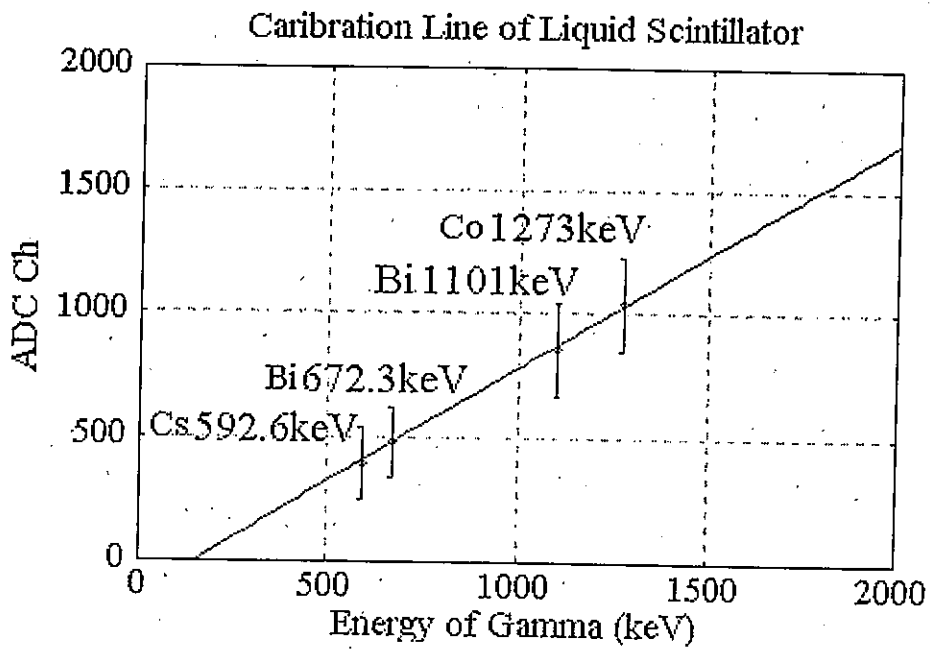
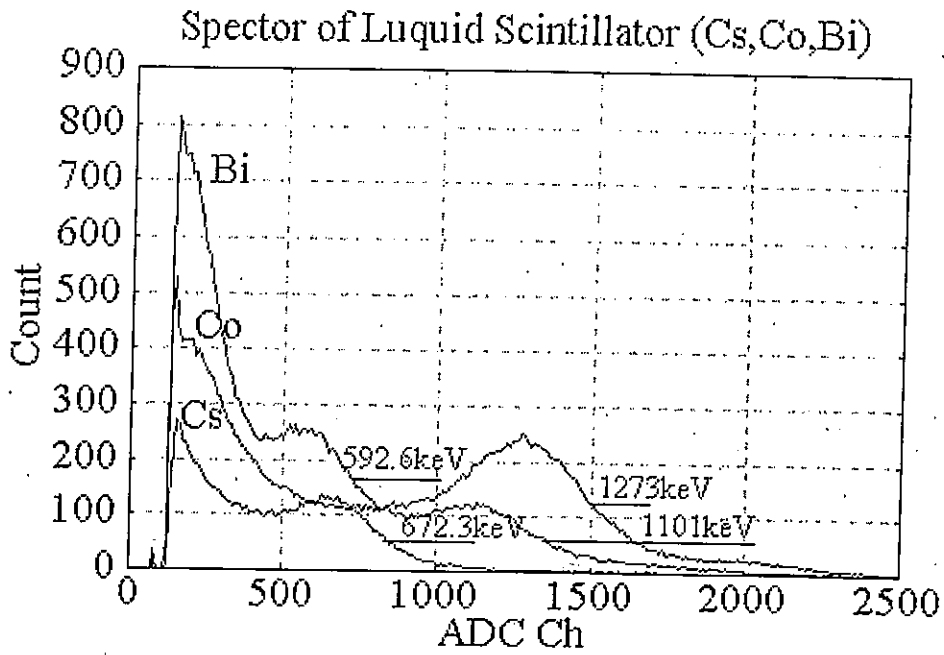


図 4.12_液体シンチレーターの各エネルギースペクトルとエネルギー較正直線

4.6 測定結果

この実験では遮蔽体として水（水深 15,30cm）、ステンレス（厚さ 1,3.2cm）を用いて測定している。ここで、それぞれの測定結果を図 4.13~4.17 に示す。図 4.13 は遮蔽体を置かない場合、4.14 は水 15cm、4.15 は水 30cm、4.16 はステンレス 1cm、4.17 はステンレス 3.2cm のトリガーカウンター、液体シンチレーターの ADC スペクトル、及び TDC スペクトルのデータである。NaI、液体シンチレーターにはそれぞれ 2 本ずつ光電子増倍管を使用しているが、各データはキャリブレーションの結果に基づいて各 1 本ずつのデータに変換してある。またこのデータは別に測定したバックグラウンドのデータを差し引いたものである。

まず Am/BE 線源からは 4-8MeV の中性子が放出されるが、これら中性子の速度から TDC スペクトルのうちデータを選別した。更にトリガーカウンターの ADC スペクトルにおいて 4.43MeV γ 線スペクトル (photo peak+single, double escape) から one sigma の範囲でデータを絞り込んだ。宇宙線 μ 粒子の影響がバックグラウンドとして考えられるが、これらの信号は NaI の ADC スペクトルでほとんどが over flow したデータとして検出されるはずなので、結局影響は少ないといえる。

液体シンチレーターの ADC スペクトルをみると信号は数 100keV の領域に集中しているのがわかる。数 MeV 程度の中性子では液体シンチレーター中の陽子と弾性散乱する場合、重心座標系で等方散乱する。従って散乱された陽子の持つエネルギーは 0 から入射中性子のエネルギーにわたる。(Appendix C 参照) γ 線の信号 (従って反応を起こした電子の信号) と陽子によるものとは発光のクエンチングの大きさの違いがよくわかっていないが、これをみる限りでは大体 1/10 のオーダーであるといえる。

次に TDC のスペクトルであるが、中性子の速度を考慮すると、一度も散乱されずに BOX に入射する 1 次中性子線で、TDC の約 500-800Ch の範囲に信号が出るはずであるが、グラフをみると更に 1000Ch 付近まで信号がみとれる。これは多重の散乱を受けた後に BOX に入射した中性子の信号であると考えられる。この信号のイベント数を求め、中性子によるイベント数とする。ちなみにこれらのデータは一定時間の測定に規格化されている。各測定において求められた中性子のイベント数を比較することで中性子の阻止能を調べる。TDC スペクトルの零点付近 (400 ch) にある信号は、遮蔽体の増加に応じて減少している分に関しては 4.43 γ の対生成による γ 線の場合、1m でも 3ns 程度で飛行するため、一部はこれが原因であると考えられる。残りの部分は測定装置による電氣的なノイズが原因

と考えられるが、今のところまだ完全に原因がわかっていない。

さて、このTDCスペクトルの測定結果より求めた、一定時間内（約 2 日間）での中性子イベント数を表 4.3 の示す。

遮蔽体	中性子イベント数	比
なし	2490 ± 116	1
水 15 cm	1210 ± 151	0.49
30 cm	817 ± 94.4	0.33
ステンレス 1 cm	1860 ± 149	0.75
3.2 cm	921 ± 73.4	0.33

表 4.3 各遮蔽体における中性子イベント数

ここで遮蔽体が無い場合の値を基準に比をとったものを図 4.18(水)、4.19(ステンレス)に示す。この結果から中性子(4-8MeV)の水中、ステンレス中での減衰長を求めた。入射中性子の強度を I_0 とすると、

$$I = I_0 e^{-\Sigma x}$$

とおける。 Σ は巨視的にみた断面積で、

$$\Sigma = N * \sigma_T$$

である。ここで N は単位体積あたりの原子数で、 σ_T は全断面積である。これを測定結果にフィットさせたところ減衰長は、

水 : 23.8cm

ステンレス : 3.02cm

と得られた。一方様々な実験による断面積の値を用いた数値計算では、

水 : 約 10 cm

ステンレス : 5~6cm

であった。水に関しては計算値の約 2 倍という結果が得られたわけであるが、この計算の場合 1 次中性子線のみを考慮しているのに対し、実際には水の体積の大きさから多重散乱による考慮が大きく、これによって減衰長が長く見積もられていると考えられる。これは TDC スペクトルにおいて飛行時間の大きいものがみられたことからわかる。一方ステンレスに関しては逆に 1/2 の結果が得られている。これに関しては再現性のチェックをするとともにモンテカルロによるシミュレーションによって散乱中性子によるビルドアップの効果を調べる必要がある今後の課題である。ただ、KamLAND 検出器での純水槽外壁と

球形ステンレスタンクの間には 1m 程度の間隔があるため数 MeV 程度の中性子によるバックグラウンドは問題にならないと結論できる。

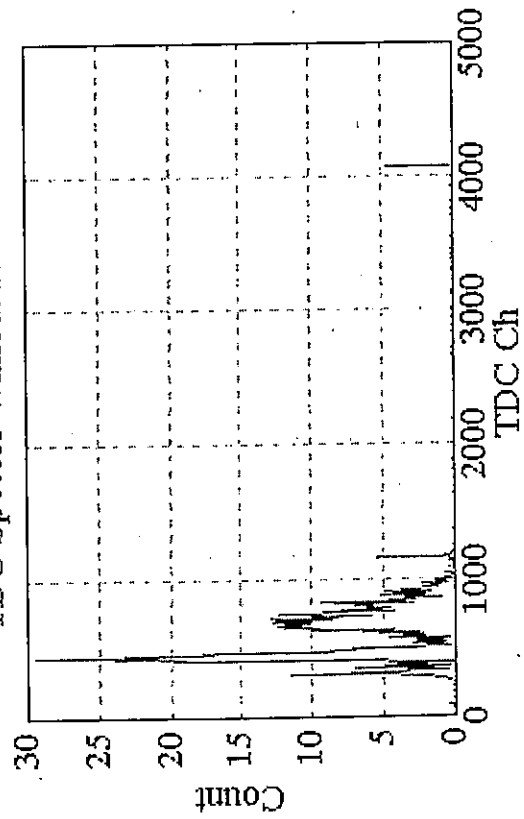
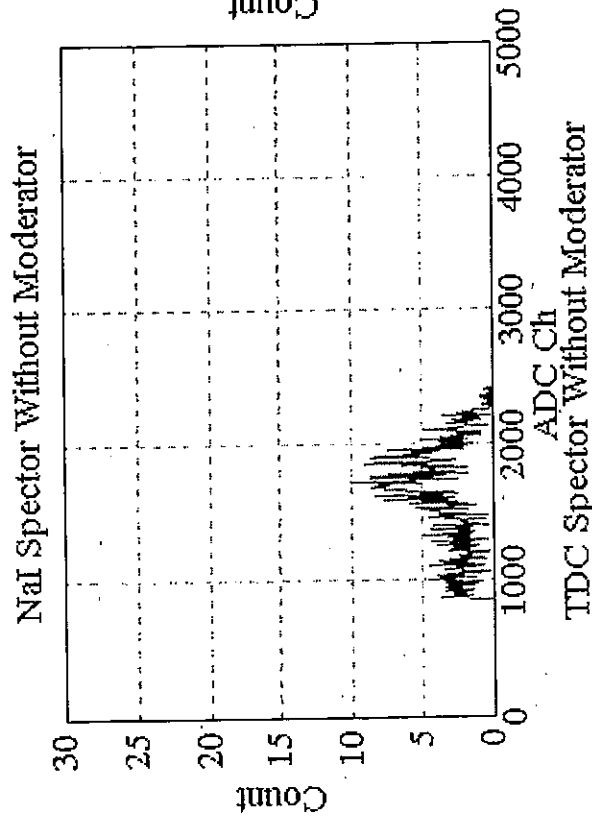
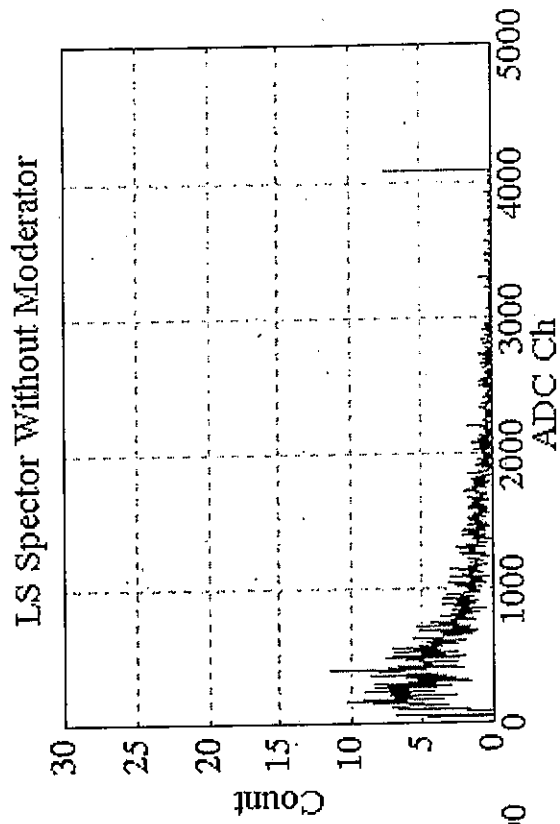


図4.13 遮蔽体が無い場合の各測定結果

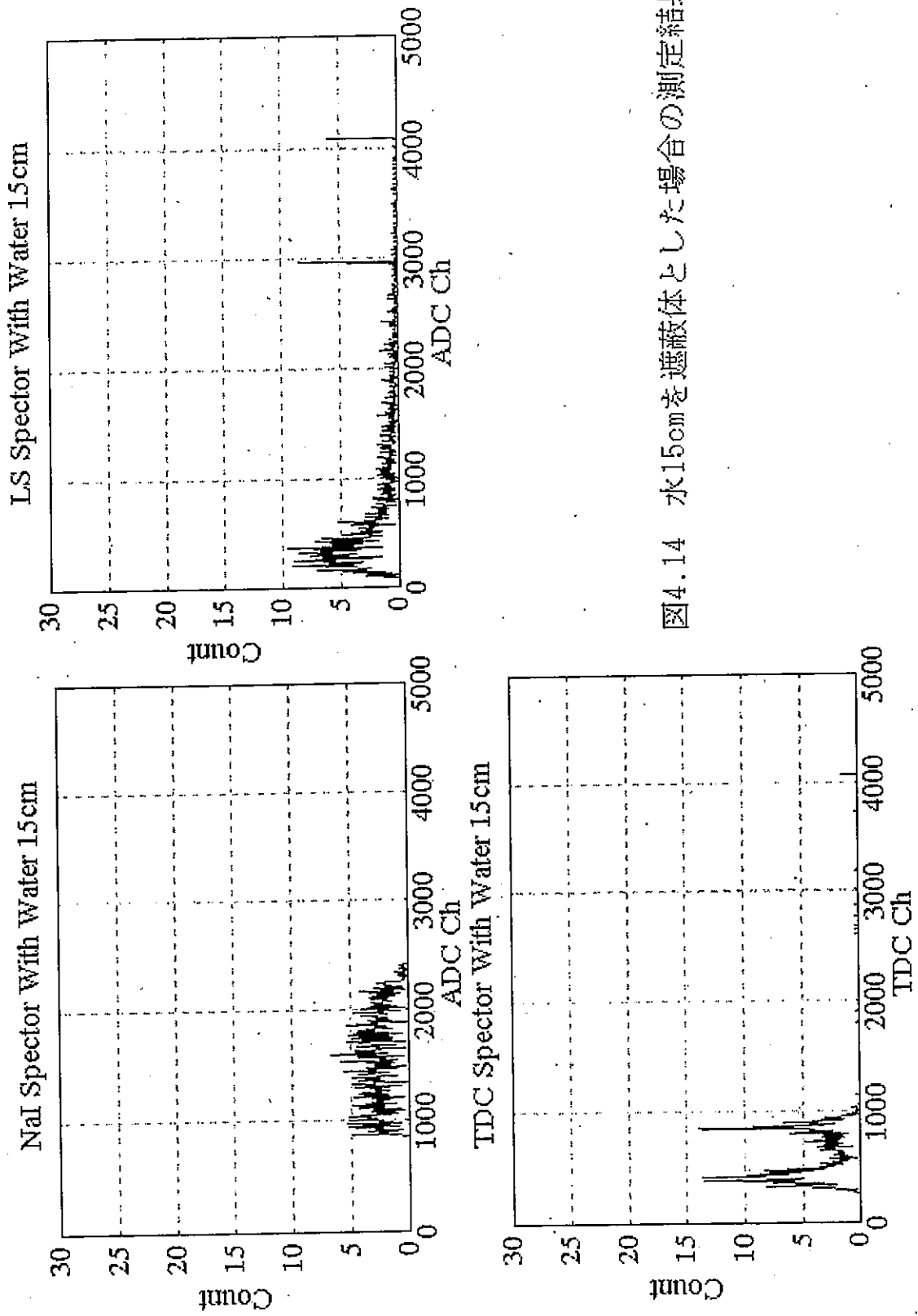


図4.14 水15cmを遮蔽体とした場合の測定結果

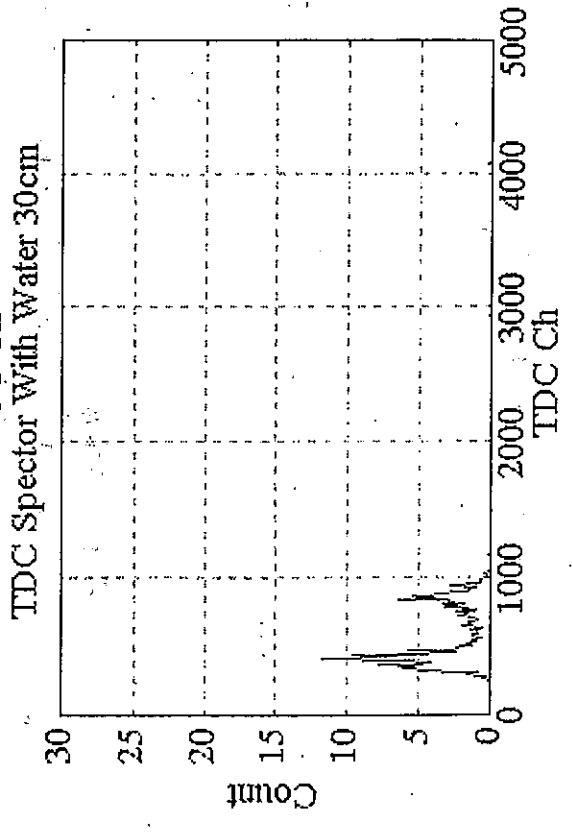
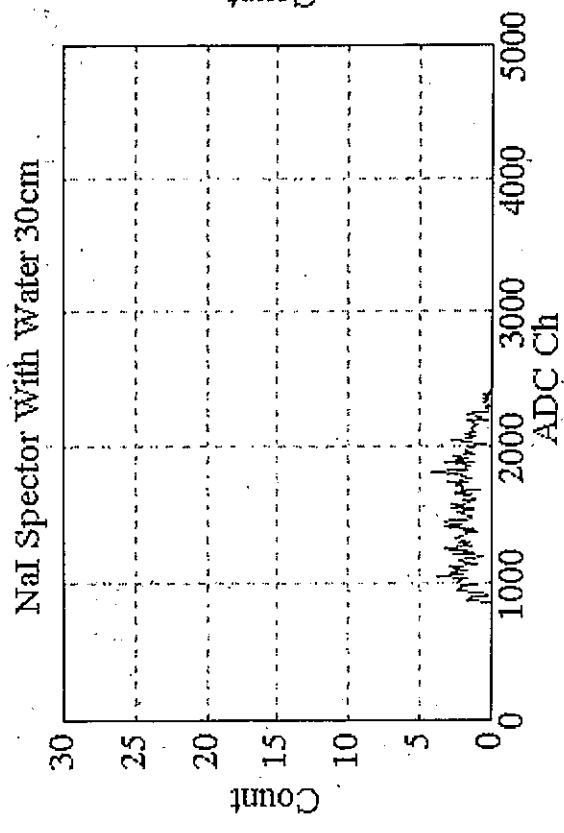
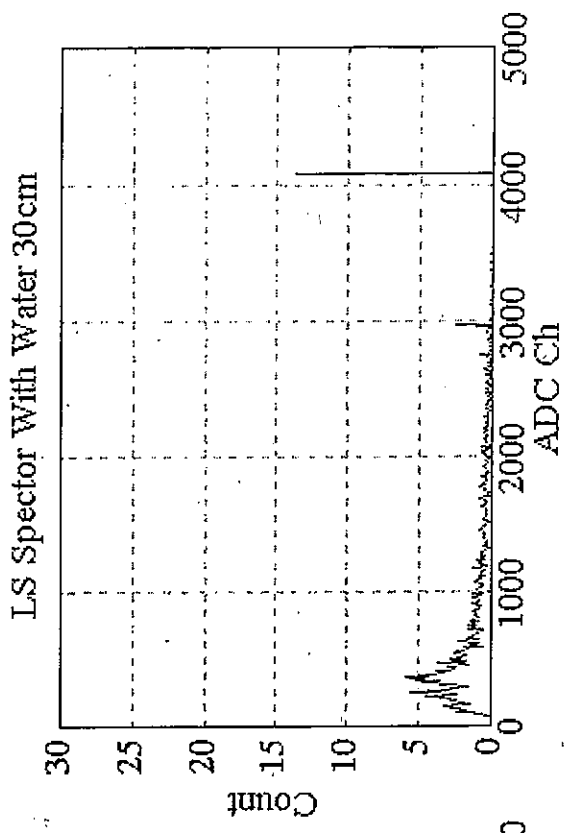


図4.15 水30cmを遮蔽体とした測定結果

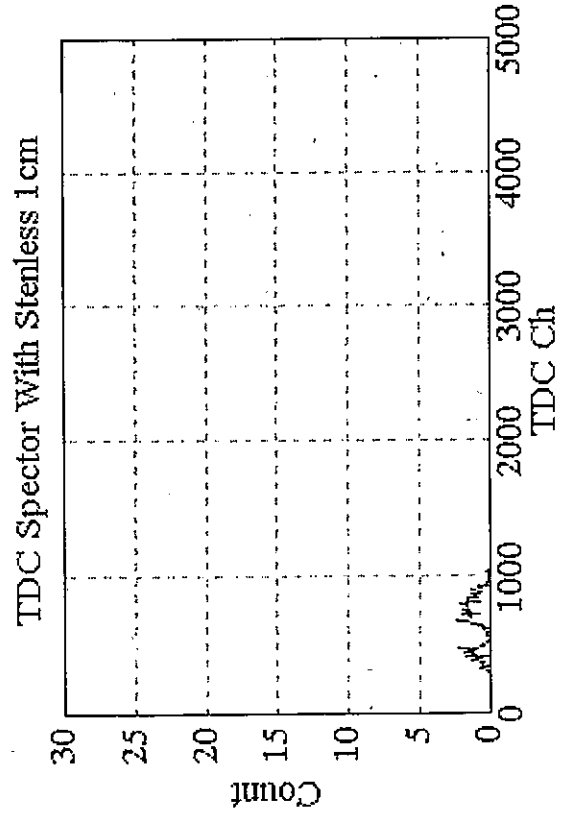
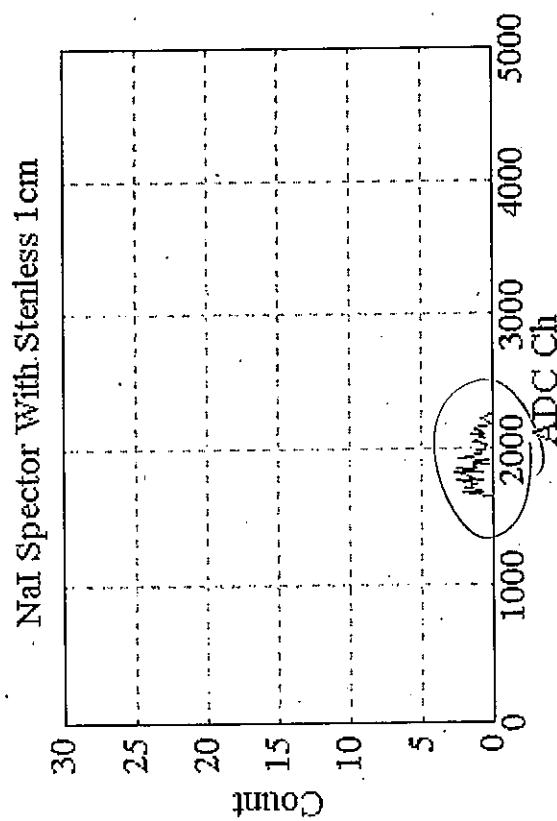
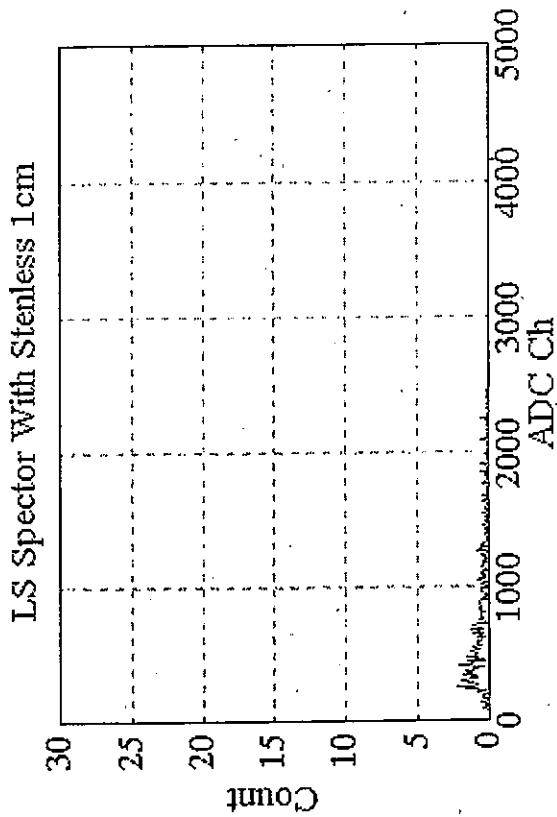


図4.16 ステンレス1cmを遮蔽体とした測定結果

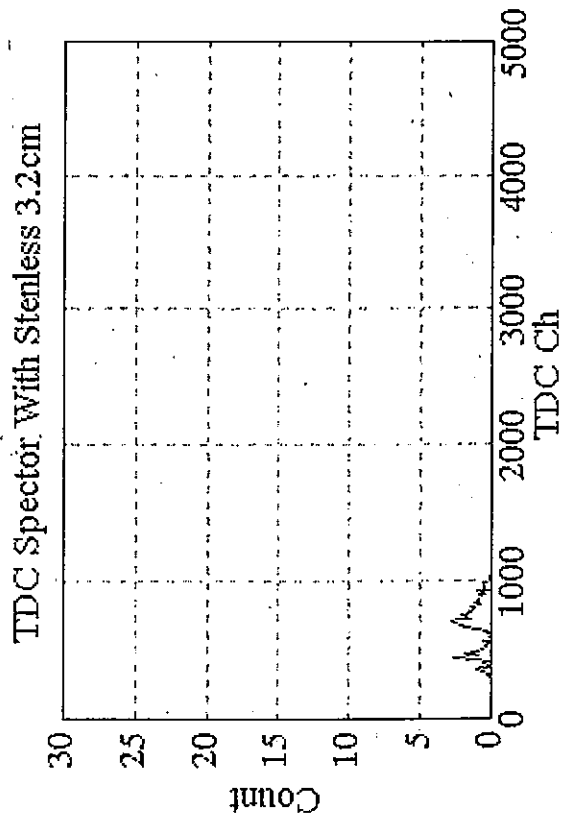
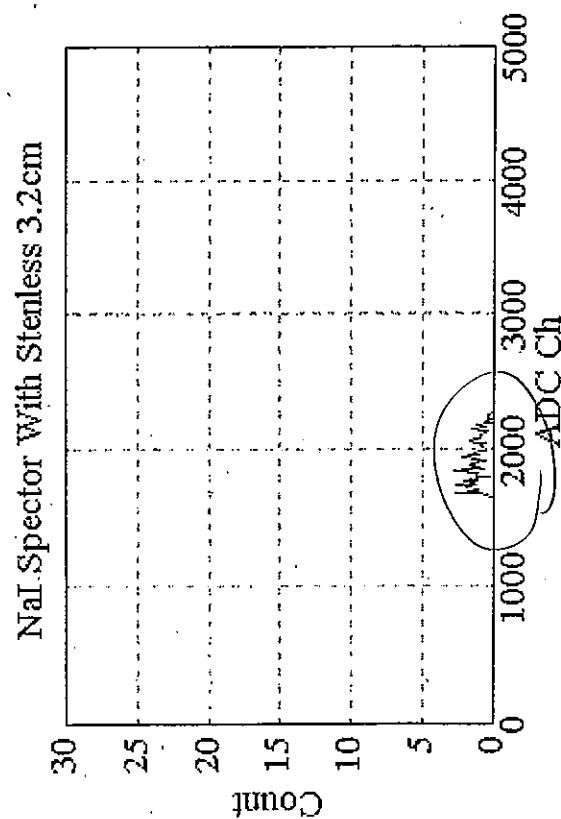
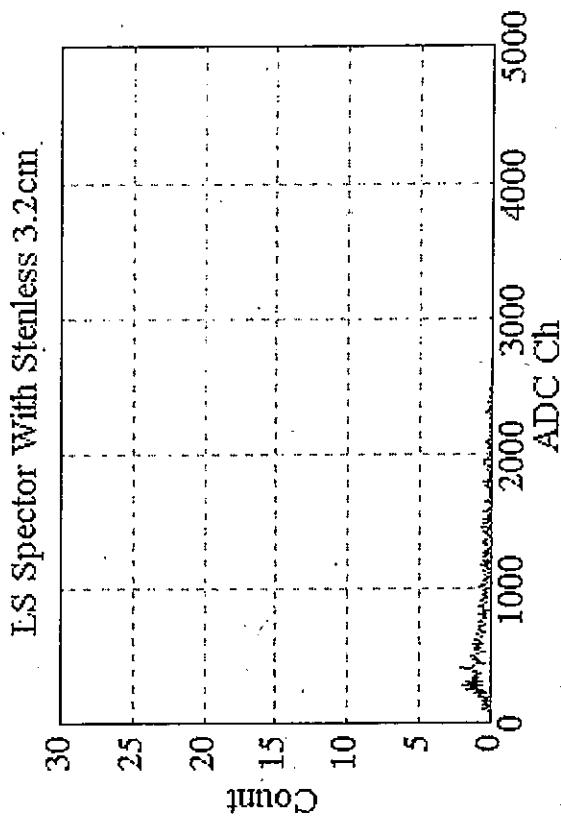


図4.17 ステンレス3.2cmを遮蔽体とした測定結果

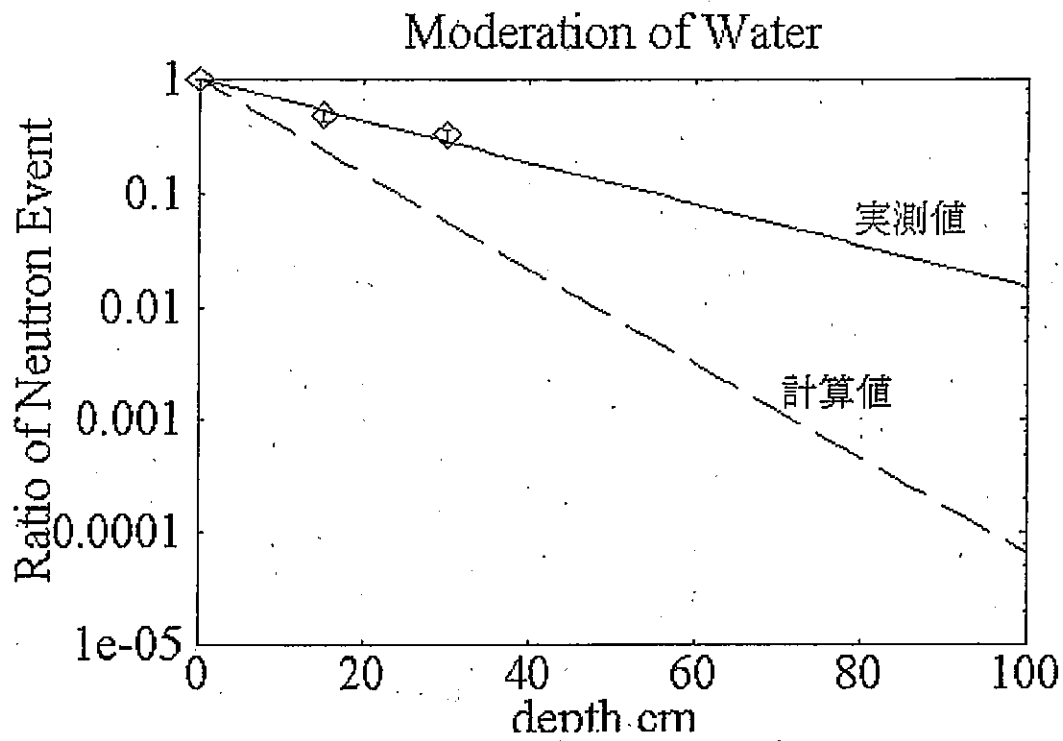


図 4.18_水の中性子に対する遮蔽効果

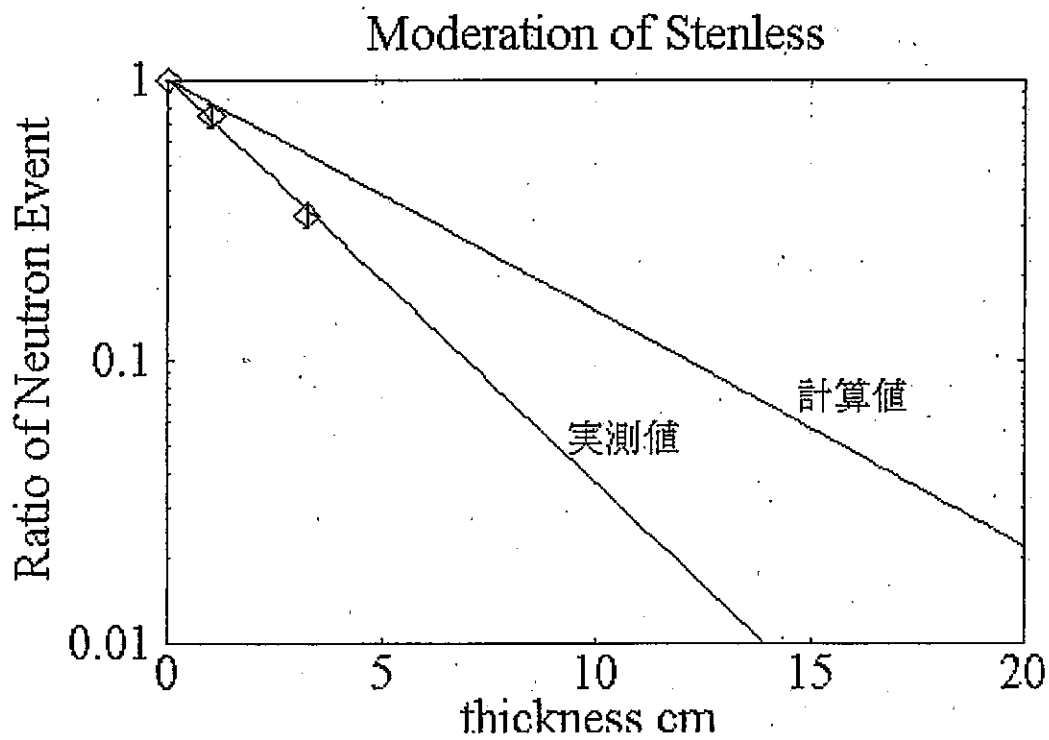


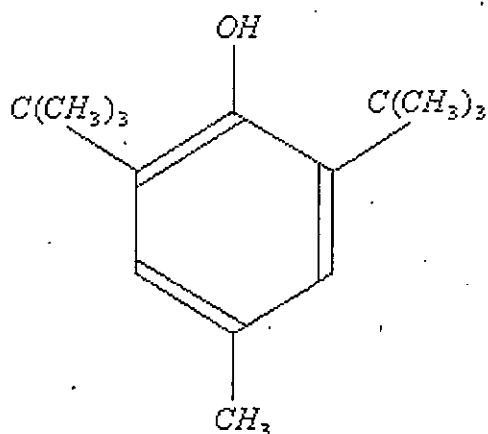
図 4.19_ステンレスの中性子に対する遮蔽効果

Appendix A

○ BHT の特徴

BHT : BUTYLATED HYDROXY TOLUEN

$C_{15}H_{24}O / C_6H_2(OH)(CH_3)(C(CH_3)_3)_2$



分子量: 220.34

沸点 : 265℃

融点 : 70℃

密度 : 1.03 ~ 1.05 g/cm³

引火点: 127度

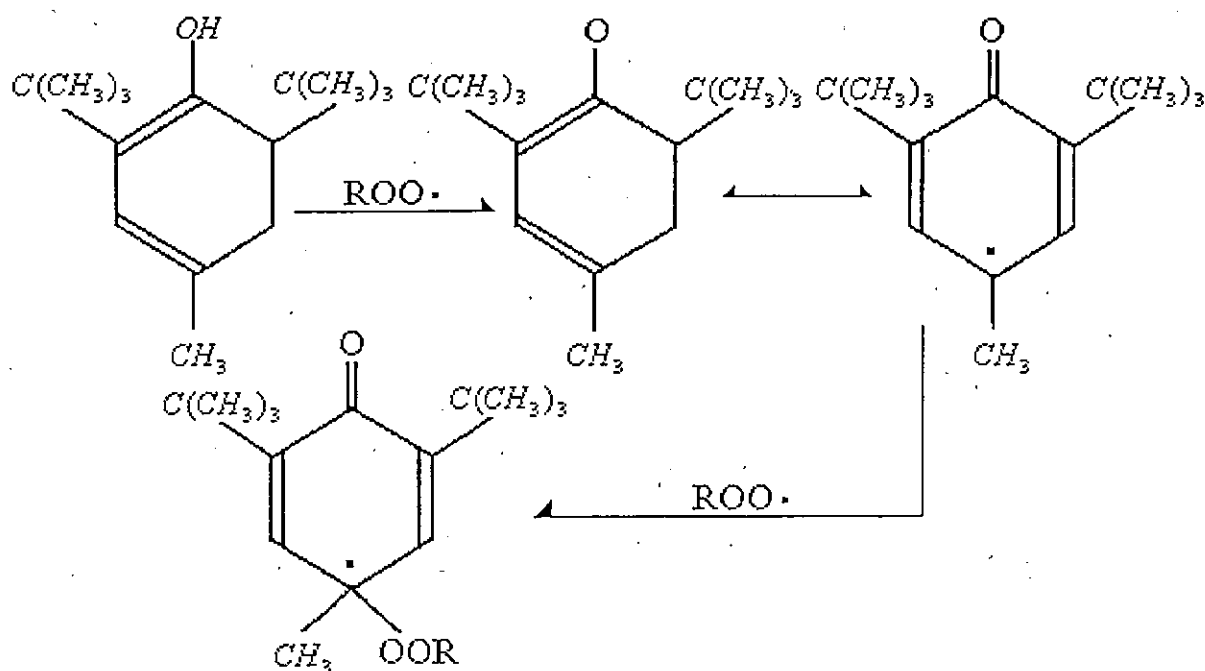
物理的状態

無色～薄黄色の結晶、または粉末

化学的危険性

燃焼あるいは酸化性物質との接触で分解

○ BHT の酸化反応

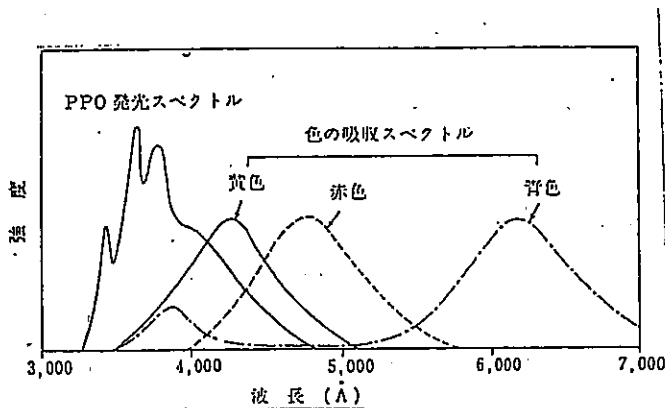


Appendix B

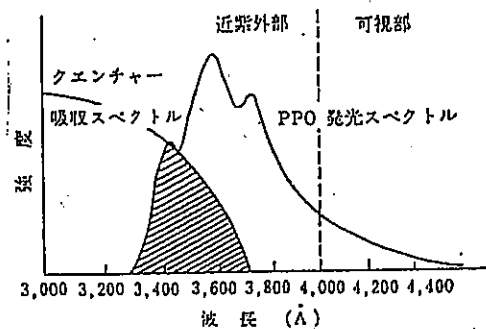
○色クエンチング

溶質の発光スペクトルと重複するような吸収スペクトルを持つ物質が液体シンチレーター中に存在すると、生じたシンチレーション光の一部が吸収され、それによるエネルギー分解能の低下などを起こす可能性がある。このシンチレーション光の吸収によるクエンチングは色クエンチングと呼ばれている。

以下に KamLAND の液体シンチレーター中で発光体として用いている PPO (2,5-diphenyl oxazole) の発光スペクトルと吸収スペクトルとの関係を示す。



着色物質による色クエンチング



色クエンチングの説明図
着色部分で色クエンチングが起こる

液体シンチレーターを長時間にわたって日光にさらし続けると黄色に着色してくることがわかっている。色クエンチングはこの色の種類と濃淡に左右されるのだが、短波長の青色を呈している場合にはクエンチングされる波長領域は長波長側にあり、PPO の発光領域とはあまり重ならないのだが、長波長の赤色や黄色を呈している場合には短波長側に吸収スペクトルを持つので、PPO によって発光された光子がすぐに吸収され検出器に届かない。よって液体シンチレーターの実際の発光量は少なく観測され、それによってエネルギー分解能の低下にもつながり問題となる。

Appendix C

○水素化合物中における中性子の運動

1. 中性子の拡散と減速

中性子がパラフィン等の水素化合物へ放射されると中性子は主に陽子との衝突によって急激な減速過程を被る。この衝突によって中性子のエネルギーは $1/e$ 倍ずつ減少する。従って数 MeV 程度の中性子は 20 回程度の散乱で熱中性子化する。そこで水素化合物中での中性子の散乱を次の 2 つの過程に区別して考える。

- 1) 減速過程：熱散乱のエネルギーにまで減速される過程
- 2) 熱散乱：熱散乱のエネルギーにまで減速された中性子が水素化合物から外へ逃げ出すか、捕獲されるまでの過程

2-1. 減速の過程

ここでは水素原子は静止しており化学結合による束縛も無視できるとして話をする（普通の水素化合物の場合、水素原子の化学結合による振動の振動数は $1000 \sim 4000 \text{ cm}^{-1}$ であるので $E_n \gg h\nu = 1 \text{ eV}$ となる）。

中性子と陽子の衝突においてその重心が静止しているような座標系において中性子の散乱角が全方向に一樣であるとする、陽子が静止しているような座標系では、陽子と中性子の質量がほぼ等しいこと、運動量とエネルギーの保存則等を考慮すると、衝突の前後でなす角は常に鋭角である。更に衝突の前後での中性子のエネルギーを w 、 w' とすると

$$\frac{w'}{w} = \cos^2 \theta \quad (1)$$

となる。また、衝突後中性子のエネルギーが $w' \sim w' + dw'$ の間にある確率は、

$$dp = \frac{dw'}{w} = \frac{2v' dv'}{v^2} \quad (2)$$

となることが推論できる。

ここで初速度 v_0 をもってとびだす中性子を Q 個/秒で作り出す速い中性子のソースが入れてある無限大のパラフィン塊を考え、その中で速度が $v \sim v + dv$ の間にある中性子の個数を決定する。これを $N(v)dv$ とおくと、これは衝突による減速のため減少する因子

と、更に大きな速度をもつ中性子が同じく減速されこの範囲に入ってくることによって増加する因子を持つだろう。定常状態ではこの増加と減少は相殺するはずである。単位時間中に中性子が1回の衝突を起こす確率は平均自由行程を $\lambda(v)$ とすると、

$$\frac{v}{\lambda(v)} \quad (3)$$

であるので、定常状態では次の式が成立する。

$$\frac{N(v)}{\lambda(v)} = \frac{2Q}{v^3} + 2 \int_v^{v_0} \frac{1}{v} \frac{N(v)}{\lambda(v)} dv \quad (4)$$

この両辺を v で微分し、微分方程式を解くと、

$$v^2 \frac{N(v)}{\lambda(v)} = \text{const}$$

これと(4)より $\text{const} = 2Q$ が得られ、従って、

$$N(v) = \frac{2Q\lambda(v)}{v^2} \quad (5)$$

が導かれる。これが1eVより大きなエネルギーを持つ中性子の速度に対する分布側である。

2-2. 減速過程における中性子の到達距離

中性子が衝突によって減速される場合、より多くの衝突を被った中性子ほどより小さいエネルギーを持つであろうし、ソースからの平均距離も大きくなると考えられる。そこで中性子のソースからの平均自乗距離 \bar{r}^2 をエネルギーの関数として求める(1eV以上において)。また、ここでは水素原子との衝突のみを考えてみる(実際水やパラフィン中ではHとの衝突が90%以上を占める)。

$$\bar{\lambda}_0, \bar{\lambda}_1, \dots, \bar{\lambda}_n$$

を最初の $n+1$ 個の自由行路の変位とすると、全変位は、

$$\bar{r} = \bar{\lambda}_0 + \bar{\lambda}_1 + \dots + \bar{\lambda}_n \quad (6)$$

となる。

さて、 n 回目の衝突で E_n がある値 ω_n を取るとし、 \bar{r}^2 を ω_n の関数として求める。

ここで、

$$x = \log \frac{\omega_0}{\omega} \quad (7)$$

とおき、また、 θ_r を λ_{r-1} と λ_r との間の角度とすると $\xi_r = x_r - x_{r-1}$ とおいて(1)、(7)より、

り、

$$\cos \theta_r = e^{-\frac{1}{2}\xi_r} = e^{-\frac{1}{2}(x_r - x_{r-1})} \quad (8)$$

である。ここで、

$$a = \log \frac{\omega_0}{\omega_a} \quad (9)$$

とおくと a は E_n を $\omega_0 \rightarrow \omega_a$ まで減少させるのに要する衝突の平均回数を表す。

$$\bar{\lambda}_r^2 = 2\lambda^2(x_r) \quad , \quad \bar{\lambda}_r = \lambda(x_r)$$

と、(8) を考慮すると、

$$\overline{\cos(\lambda_r \lambda_s)} = \cos \theta_{r+1} \cos \theta_{r+2} \dots \cos \theta_s = e^{-\frac{1}{2}(x^2 - x_r)} \quad (10)$$

が得られる。これを (6) を自乗したものに適用すれば、

$$\bar{r}^2 = 2 \sum_0^n \lambda^2(x_r) + 2 \sum_{0 \leq r < s \leq n} \lambda(x_r) \lambda(x_s) e^{-\frac{1}{2}(x_s - x_r)} \quad (11)$$

が求まる。

x のひとつが dx にある確率は dx に等しいので

$$\overline{\sum_n \lambda^2(x_r)} = \lambda^2(0) + \int_0^a \lambda^2(x) dx + \lambda(a)$$

$$\overline{\sum_n \lambda(0) \lambda(x_r) e^{-\frac{x_r}{2}}} = \lambda(0) \int_0^a \lambda(x) e^{-\frac{1}{2}x} dx + \lambda(0) \lambda(a) e^{-\frac{1}{2}a}$$

$$\overline{\sum_{n-1} \lambda(x_r) \lambda(a) e^{-\frac{1}{2}(a-x_r)}} = \lambda(a) \int_0^a \lambda(x) e^{-\frac{1}{2}(a-x)} dx$$

が得られる。

$$\sum_{1 \leq r < s \leq n-1} \lambda(x_r) \lambda(x_s) e^{-\frac{1}{2}(x_s - x_r)}$$

については、境界 x, a の間にある x_s の全ての可能な値にわたって平均をとり、かつ x_r についてもとりうる全ての値にわたって平均をとると、

$$\int_0^a \lambda(\xi) d\xi \int_0^{a-\xi} \lambda(\xi+x) e^{-\frac{1}{2}x} dx$$

をうる。これらを集めると、

$$\bar{r}^2 = 2\lambda^2(0) + 2\lambda^2(a) + 2\int_0^a \lambda^2(x)dx + 2\lambda(0)\int_0^a \lambda(x)e^{-\frac{1}{2}r} dx + 2\lambda(0)\lambda(a)e^{-\frac{a}{2}}$$

$$+ 2\lambda(a)\int_0^a \lambda(x)e^{-\frac{1}{2}(a-r)} dx + 2\int_0^a \lambda(\xi)d\xi \int_0^{a-\xi} \lambda(\xi+x)e^{-\frac{1}{2}x} dx \quad (12)$$

と求まる。この式は中性子とソースとの間の距離の自乗平均がエネルギーの減少（すなわち a の増加）に従ってどの様に増してゆくかを表す。(12) を a で微分すると、

$$\frac{d\bar{r}^2}{da} = 4\lambda^2(a) + 4\lambda(a)\lambda'(a) + \lambda(0)[\lambda(a) + 2\lambda'(a)]e^{-\frac{a}{2}} + [\lambda(a) + 2\lambda'(a)]\int_0^a \lambda(x)e^{-\frac{1}{2}(a-x)} dx \quad (13)$$

をうる。

3. 熱中性子の過程

今までは中性子のエネルギーが 1 eV 以上の領域において議論してきたが、おそらく 10 回程度も散乱されるうちにこの中性子のエネルギーは 1 eV より小さい、すなわち水素原子の化学的結合が無視できないような値にまで減速されるであろう。ここでは熱拡散のエネルギーにまで減速された中性子の運動について考えることにする。これらの中性子は一方ではより速い中性子の減速によって増加するが、他方、大部分は水素原子によって捕獲され重水素核を形成することで消滅する。この捕獲過程の影響を平均寿命を導入することで表す。

Q 個/秒で熱中性子を作り出すソースが無限大のパラフィン塊の中にあるとする。そのとき、ある瞬間に存在する熱中性子の総数は、

$$R_1 = Q\tau \quad (14)$$

である。λ をパラフィン中の熱中性子の平均自由行程 (0.3 cm)、ν を平均速度 (2.5 × 10⁵ cm/sec)、N を熱中性子が捕獲されるまでに走る自由行程の平均個数 (N=140) とすると、

$$\tau = \frac{\lambda N}{\nu} \quad , \quad N_1 = Q\tau \quad (15)$$

の関係が成立する。従って $\tau = 1.7 \times 10^{-4}$ sec と求まる。また熱中性子の密度を $n(x,y,z,t)$ を単位時間に単位体積中においてより速い中性子が減速されることによって生じる熱中性子の個数とすると、

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{\lambda v}{3} \Delta n - \frac{1}{\tau} n + q \quad (16)$$

となる。第1項は拡散の影響を、第2項は捕獲による中性子の消滅の影響を、第3項は減速による熱中性子の生成の影響を表している。定常的な場合には(15)を考慮して(16)は、

$$n = \frac{\lambda^2 N}{3} \Delta n + \frac{q \lambda N}{v} \quad (17)$$

と求まった。

ここで(17)を次の例に適用してみる。

左側が $x=0$ の平面で限られ、この右側全空間を占めるパラフィン塊があるとして、 $x=a>0$ にある熱中性子が捕獲されずに平面 $x=0$ を通り抜け外へ逃げ出す確率を求める。この問題を解くため、まず(17)を1次元の式に直す。これは(17)の両辺に $dydz$ をかけ y, z に関して $-\infty \rightarrow +\infty$ で積分すればよい。

$$\rho(x) = \iint n dy dz, \quad f(x) = \iint q dy dz \quad (18)$$

とおき、次の関係、

$$\iint \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} dy dz = \iint \frac{\partial^2 n}{\partial z^2} dy dz = 0$$

を用いると、

$$\rho(x) - \frac{\lambda^2 N}{3} \frac{d^2 \rho}{dx^2} = \frac{\lambda N}{v} f(x) \quad (19)$$

が得られる。ここで $f(x)$ は $x \neq a$ に対しては0であり、 $x = a$ に対しては、

$$\int f(x) dx = Q \quad (20)$$

を満たす。よって a 以外の点では $\rho(x)$ が、

$$\rho - \frac{\lambda^2 N}{3} \frac{d^2 \rho}{dx^2} = 0 \quad (21)$$

を満たすと推論できる。また $\rho(x)$ は、

$$\rho(0) = 0, \quad \rho(\infty) = 0 \quad (22)$$

を満たさねばならない。

微分方程式(21)の解は(22)を考慮すると、

$$\rho(x) = A \left\{ \exp\left(\sqrt{\frac{3}{\lambda 2N}} x\right) - \exp\left(-\sqrt{\frac{3}{\lambda 2N}} x\right) \right\} \quad (0 < x < a)$$

$$\rho(x) = B \exp\left(-\sqrt{\frac{3}{\lambda 2N}} x\right) \quad (x > a) \quad (23)$$

となる。さらに (19) (20) より特異点 a において ρ は連続なのに ρ' は不連続であることがわかるので、

$$\delta\rho(a) = 0, \quad \delta\left(\frac{d\rho}{dx}\right)_{x=a} = -\frac{3}{\nu\lambda} Q \quad (24)$$

これより (23) の定数 A, B は

$$A = \frac{\sqrt{3N}}{2\nu} Q \exp\left(-\sqrt{\frac{3}{\lambda 2N}} a\right), \quad B = A \left(\exp\left(\sqrt{\frac{3}{\lambda 2N}} a\right) - 1 \right) \quad (25)$$

と求まる。単位時間中にパラフィンから出て行く中性子の数は明らかに x に関する ρ の微係数の $x=0$ の点の値と拡散係数 $\lambda \nu / 3$ との積で与えられるので、

$$\frac{\lambda\nu}{3} = 2A \sqrt{\frac{3}{\lambda^2 N}} = Q \exp\left(-\sqrt{\frac{3}{\lambda 2N}} a\right) \quad (26)$$

従って $x=a$ の点を出発し、熱中性子が $x=0$ の平面から外へ逃げ出す確率 $p(a)$ は、(26) と Q の比、

$$p(a) = \exp\left(-\sqrt{\frac{3}{\lambda N}} a\right) \quad (27)$$

と導出される。また、この公式は N が大きく λ が小さく、 $\lambda^2 N$ が丁度有限に保たれるような場合以外は正確には成立しないことを断っておく。

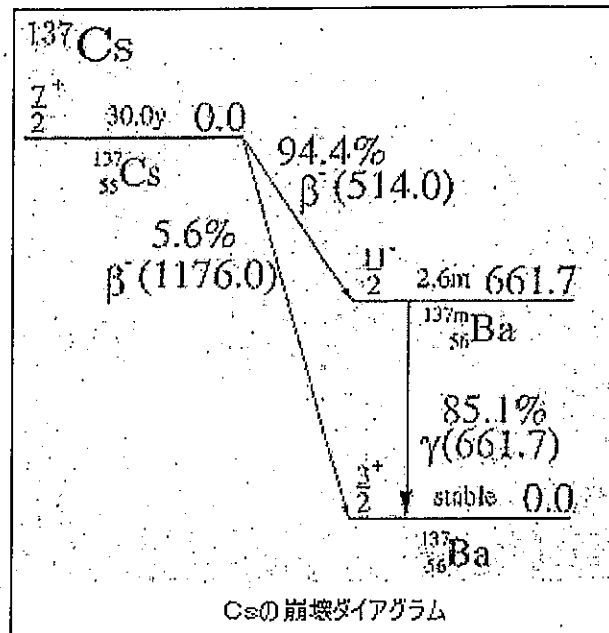
Appendix D

(1)各線源の仕様

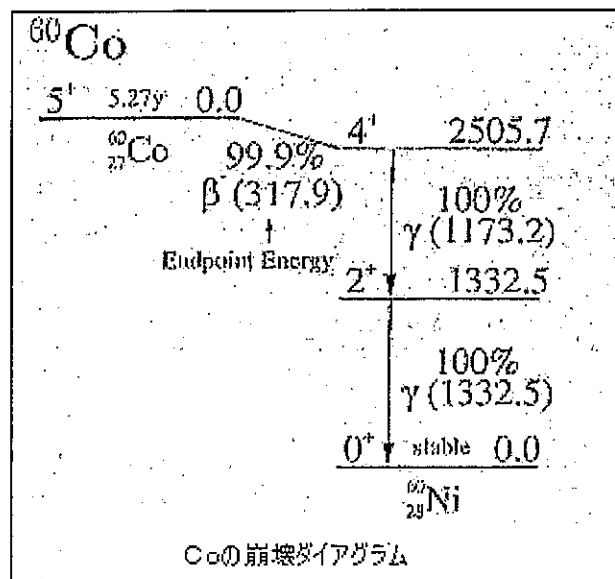
	Halftime	type of decay	Particle		photon	
			(MeV)	prob	(MeV)	prob
○ $^{137}_{55}\text{Cs}$ 37KBq (Jun / 25 / 96)	30.2y	β^-	0.514 e^-	94%	0.662	85%
			1.176 e^-	6%		
○ $^{60}_{27}\text{Co}$	5.271y	β^-	0.316	100%	1.173	100%
					1.333	100%
○ $^{207}_{83}\text{Bi}$ 37KBq (Jun / 10 / 87)	31.8y	EC	0.481 e^-	2%	0.569	98%
			0.975 e^-	7%	1.063	75%
			1.047 e^-	2%	1.770	7%
○ $^{241}_{95}\text{Am/Be}$ 3.7MBq (Feb / 10 / 98)	432.2y	6×10^{-5} neutron (4-8MeV) per Am decay				
		4×10^{-5} γ (4.43MeV) per Am decay				

(2) 各線源の崩壊図

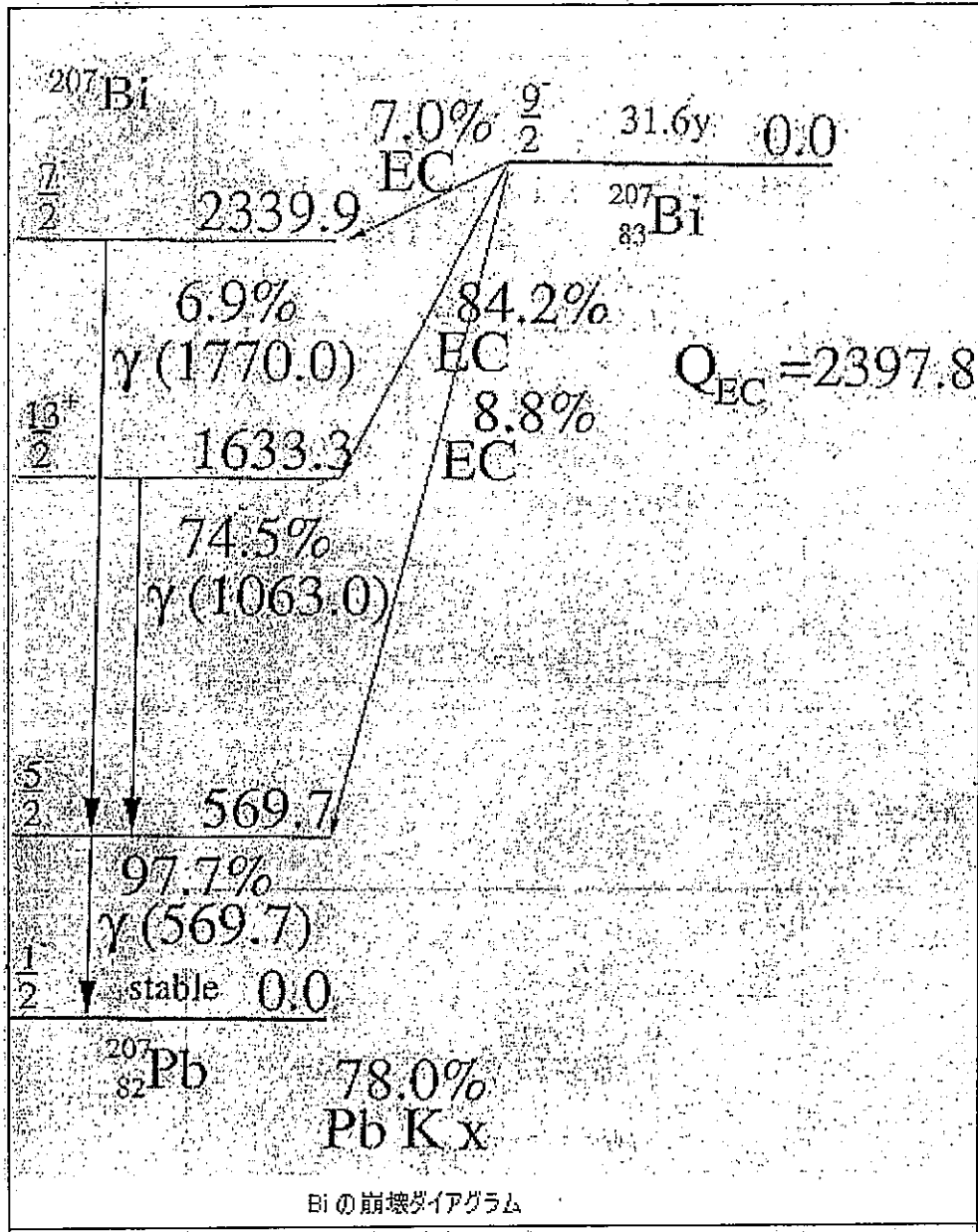
(2-1) Cs の崩壊図



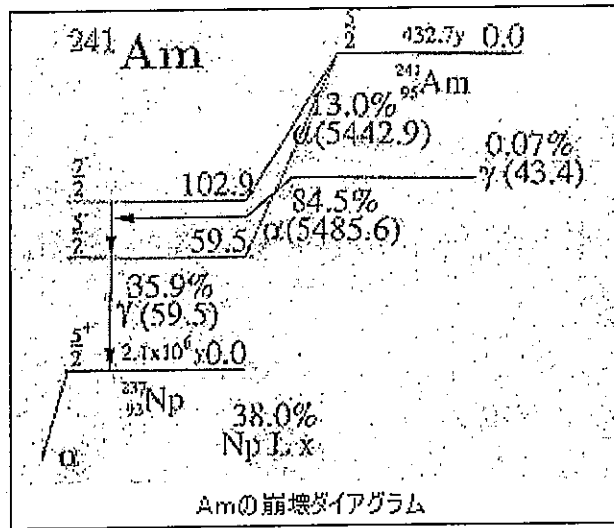
(2-2) Co の崩壊図



(2-3) Bi の崩壊図



(2-4) Am/Be の崩壊図



Appendix E

測定に用いた各検出器の仕様

(1) 2int 光電子増倍管 (HAMAMATSUR329-02)

○分光感度特性		
波長範囲	(nm)	300~650
最高感度波長	(nm)	420
○光電面		BA
○窓材質		K
○ダイノード		ラインフォーカス 12段
○陽極-陰極間 電圧 (V d c)		2700
○平均陽極電流 (mA)		0.2
○陽極-陰極間 印加電圧 (V d c)		1500
○電流増倍率 (T y p)		1.1×10^6
○Transit Time (ns)		48

(2) 8int 光電子増倍管

型 H5912

高電圧	:	1540V
P/V	:	3.03
T. T. S	:	2.161ns
Dark Counts	:	2.5Kcps

(3) TDC (REPLIC RPC-061)

COMMON START INPUT	1 INPUT Negative NIM 50Ωインピーダンス
INDEPENDENT STOP INPUT	8 INPUT Negative NIM 50Ωインピーダンス
RESET INPUT	1 INPUT Negative NIM 50Ωインピーダンス
FULL SCALE	250nS・500nS(RPC-061A)
DYNAMIC RANGE	12 ビット
LINEARITY	1 カウント
RESOLUTION	500nS :120pS (RPC-061A)
STABILITY	-100ppm 以下 (ゲイン) 15pS 以下 (ペDESTAL)
MEASUREMENT	20nS...フルスケール
CONVERSION TIME	50 μS/モジュール
PACKAGING	CAMAC 1 幅
POWER SUPPLY	+6V 515mA -6V 1300mA +24V 140mA -24V 17mA

(4) ADC (REPLIC RPC-022)

CHANNEL	16CH
ANALOG INPUT	16 INPUT ユニポーラ DCカップル 50Ωインピーダンス
GATE INPUT	Negative NIM 50Ωインピーダンス
入力信号幅	100nS...1000nS
CLEAR INPUT	Negative NIM 50Ωインピーダンス
入力信号幅	50nS
FULL SCALE	約・1000pC
DYNAMIC RANGE	12bit
LINEARITY	9bit 相当
PRESET PEDESTAL	0...100 count
STABILITY	ゲイン 100 ppm
ペDESTAL	0.5pC/摂氏度
CONVERSION TIME	130 μS/module
FAST CLEAR TIME	1 μS 以下
PACKAGING	CAMAC 1 幅
POWER SUPPLY	+6V 420mA /-6V 180mA /+24V 50mA /-24V 120mA

参考文献

- [1] 酸化防止剤の市場動向 http://www.cmcbooks.co.jp/review/review96_11.html
- [2] BHTの特徴 <http://www.nibs.go.jp/ICSC/icssj/icss0841.html>
- [3] 実験物理学講座 放射線 山崎文男 共立出版株式会社
- [4] 放射線計測学 裳華房
- [5] Measurement Method for Liquid Scintillation 石川寛昭 南山堂出版
- [6] 中性子の発見と研究 木村一治 玉木英彦 大日本出版
- [7] Neutron Table
- [8] 放射線遮蔽入門 兵頭知典 産業図書
- [9] 核反応 共立出版
- [10] 放射線データブック 木村健二郎 地人書館
- [11] Neutron Irradiation and Activation Analysis
- [12] ニュートリノと重力波 裳華房
- [13] 田島治 東北大学修士論文 H11
- [14] 辺秀樹 東北大学修士論文 H11
- [15] 河上聡子 東北大学修士論文 H10