# 修士論文

# シンチレーションフィルムによる

# 表面汚染測定法の開発

Development of Surface Contamination Measurement with a Scintillation Film

東北大学大学院理学研究科 物理学専攻 澁川 友菜

平成 29 年

# 概要

現在行われている地下素粒子原子核実験の中には、宇宙素粒子物理学の謎であるニュートリノを 伴わない二重ベータ崩壊 (0νββ) 探索実験 (KamLAND-Zen など) や暗黒物質の探索実験 (Xenon、 XMASS など) がある。これらの稀現象を観測するためには、あらゆるノイズを減らした極低放射 能環境を整える必要があるが、ウラン(U)系列、トリウム(Th)系列などの放射能汚染によっ て感度が制限されてしまっているのが現状である。その放射能汚染の一つに表面汚染がある。表 面汚染は検出器自身に含まれる放射性物質ではなく、検出器の作成時や運搬中に何らかの影響で 放射性物質が検出器の表面に付着することなどによって起きる。

例えば、神岡鉱山で行われているニュートリノ検出器 KamLAND を用いた KamLAND-Zen 実験では、背景信号(バックグラウンド)となるあらゆる放射性物質を除いて実現させた極低放 射能環境を活かし、<sup>136</sup>Xe を二重ベータ崩壊核とした  $0\nu\beta\beta$  探索を行っている。現在世界最高感度 での実験が可能となっているが、過去に検出器内にインストールするミニバルーン上に表面汚染 が見つかり、感度が下がってしまったことがあった。

上は一例だが、あらゆる稀現象探索実験では使用する装置の素材のU、Th含有量は非常に少 ないものを選んでいるものの、装置の作成・運搬中に起こる表面汚染については測定する手段が ない。今後更なる低バックグラウンド化を実現するために、表面汚染を高感度で計測・情報共有 することで高感度化への技術を高める必要がある。そこで本研究では、日本の企業と大学が開発 したフィルム型シンチレータ(シンチレーションフィルム)を用いて形状に柔軟な表面汚染測定 方法の開発を行った。シンチレーションフィルムは各放射線のエネルギー損失の違いを利用して 表面 α 線のみの測定が可能である。更に透明フィルムでシンチレーションフィルムの片側をラミ ネートすることで外部からの α 線を遮蔽し、片側感度のシンチレーションフィルムを作成した。目 標感度はミニバルーンの表面汚染である<sup>214</sup>Biを観測できる 10 μBq/m<sup>2</sup> を目指す。

薄型であるために β 線を 99%強カットできているが、更に精度を高めるために波形弁別 (PSD) を行った。PSD を評価するためにカイ二乗と、 $\alpha$  線と β 線の発光波形の違いが大きい箇所に重み 付けをした Window Function を用いたオリジナルパラメータ S を定義したところ、 $\alpha$  線を 90%取 得した時にカイ二乗では β 線の残留率は 11%、オリジナルパラメータ S<sup>2</sup> では 8.3%となった。こ れと薄型であるために 99%強カットできていることを合わせると、表面汚染からの β 線が  $n_{\beta}$  個 入射した場合、カイ二乗では 0.0005 $n_{\beta}$  個が、オリジナルパラメータ S<sup>2</sup> では 0.0004 $n_{\beta}$  個が、PSD で  $\alpha$  として検出されるということである。この結果より、例えば神岡鉱山というバックグラウン ドとなりうる β 線の多い環境でも、鉛シールドを使うことにより感度は少なくとも~55 $\mu$ Bq/m<sup>2</sup> まで測れるということが分かった。オリジナルパラメータなどにより目標であった 10  $\mu$ Bq/m<sup>2</sup> の 感度達成が可能である。KamLAND-Zen400 実験を開始する前に本研究の測定法で表面汚染を測 定し、表面汚染の起きていないミニバルーンで KamLAND-Zen400 の第 2 フェーズを同条件で実 施できたと仮定すると、解析に使用できる低バックグラウンド領域が現行の 2 倍になる。その場 合マヨラナ有効質量上限値は現行の 1/2<sup>1/4</sup> へと向上することが見込まれる。

# 目 次

<b>第</b> 1章	序論	1
第2章	宇宙素粒子物理学	3
2.1	素粒子	3
2.2	ニュートリノ	4
	2.2.1 ニュートリノの存在予測と発見	4
	2.2.2 ニュートリノ振動	4
	2.2.3 ニュートリノ質量階層構造	5
	2.2.4 マヨラナ性	6
	2.2.5 シーソー機構	$\overline{7}$
	2.2.6 ニュートリノを伴なわない二重 $\beta$ 崩壊: $0 u\beta\beta$	8
	2.2.7 物質優勢宇宙の謎	10
2.3	暗黒物質	11
	2.3.1 暗黒物質の候補	11
	2.3.2 アクシオン	11
	2.3.3 WIMP	12
第3章	地下素粒子原子核実験	14
	3.0.1 宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究	14
3.1	0νββ 探索実験:KamLAND-Zen	14
	3.1.1 KamLAND-Zen 検出器の構造	15
	3.1.2 二重 β 崩壊核: <sup>136</sup> Xe	16
	3.1.3 液体シンチレータ:KamLAND-LS と Xe-LS	16
	314 ミニバルーン	17
		тı
	3.1.5       光電子増倍管(PMT)	17
3.2	3.1.5       光電子増倍管 (PMT)         ニュートリノ検出原理	17 17
3.2	3.1.5       光電子増倍管 (PMT)         ニュートリノ検出原理	17 17 17 18
3.2	3.1.5       光電子増倍管 (PMT)         ニュートリノ検出原理         3.2.1       反電子ニュートリノ検出         3.2.2       電子散乱によるニュートリノ検出	17 17 17 18 19
3.2 3.3	3.1.5       光電子増倍管 (PMT)         ニュートリノ検出原理         3.2.1       反電子ニュートリノ検出         3.2.2       電子散乱によるニュートリノ検出         バックグラウンド	17 17 17 18 19 19
3.2 3.3	3.1.5       光電子増倍管 (PMT)         ニュートリノ検出原理         3.2.1       反電子ニュートリノ検出         3.2.2       電子散乱によるニュートリノ検出         バックグラウンド         3.3.1       0νββ 事象のバックグラウンド	17 17 18 19 19 19
3.2 3.3	3.1.1       2.1.1	17 17 18 19 19 19 22
3.2 3.3 3.4	3.1.1       2.1.1	17 17 18 19 19 19 22 22 22
3.2 3.3 3.4 3.5	3.1.1       光電子増倍管 (PMT)         ニュートリノ検出原理       ニュートリノ検出         3.2.1       反電子ニュートリノ検出         3.2.2       電子散乱によるニュートリノ検出         バックグラウンド       ニ         3.3.1       0νββ 事象のバックグラウンド         3.3.2       ミニバルーンの表面汚染         KamLAND-Zen 実験の成果         暗黒物質探索の方法	17 17 18 19 19 19 22 22 23

		3.6.1 XMASS 検出器の構造	23
		3.6.2 液体キセノン	24
		3.6.3 PMT	24
	3.7	暗黒物質検出原理	24
	3.8	検出器表面のバックグラウンド	24
	3.9	XMASS 実験の成果とその他の暗黒物質探索実験の現状	25
		3.9.1 暗黒物質を発見したと主張する DAMA/LIBRA 実験と反発するその他の実験	25
	3.10	研究のモチベーションまたは本研究の位置付け	26
第	4 <b>章</b>	シンチレーションフィルム	28
	4.1	プラスチックシンチレータ	28
		4.1.1 時間応答	28
		4.1.2 荷電粒子の種類による波形の違い	29
	4.2	シンチレーションフィルムの性能	30
	4.3	シンチレーションフィルムを用いた先行研究	31
		4.3.1 シンチレーションフィルムの発光波長	32
		4.3.2 シンチレーションフィルムの発光波形	33
		4.3.3 シンチレーションフィルムの ICP-MS 質量分析	33
	4.4	エタノール耐性	34
	4.5	洗浄	36
第	5章	表面汚染測定	40
第	<b>5 章</b> 5.1	<b>表面汚染測定</b> 表面汚染検出原理	<b>40</b> 40
第	<b>5 章</b> 5.1 5.2	<b>表面汚染測定</b> 表面汚染検出原理	<b>40</b> 40 41
第	5 章 5.1 5.2	表面汚染測定表面汚染検出原理データ取得のセットアップ5.2.1	<b>40</b> 40 41 41
第	<b>5 章</b> 5.1 5.2	表面汚染測定         表面汚染検出原理	<b>40</b> 40 41 41 41
第	5 章 5.1 5.2	表面汚染検出原理	40 40 41 41 41 42
第	5 章 5.1 5.2	表面汚染検出原理	40 40 41 41 41 42 44
第	5 章 5.1 5.2 5.3	表面汚染測定 表面汚染検出原理	40 40 41 41 41 42 44 47
第	5 章 5.1 5.2 5.3	表面汚染検出原理	40 40 41 41 41 42 44 47 47
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4	表面汚染検出原理	40 40 41 41 41 42 44 47 47 48
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4	表面汚染検出原理         データ取得のセットアップ         5.2.1       回路         5.2.2       光電子増倍管(以下、PMT)         5.2.3       CAEN 製の Flash ADC         5.2.4       実験環境         Geant4       シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定         5.3.1       各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーション         ラミネート方法       54.1         それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物       54.1	40 40 41 41 41 42 44 47 47 47 53
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5	表面汚染練出原理	40 40 41 41 41 42 44 47 47 48 53 54
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5	表面汚染測定表面汚染検出原理データ取得のセットアップ5.2.1 回路5.2.2 光電子増倍管 (以下、PMT)5.2.3 CAEN 製の Flash ADC5.2.4 実験環境5.2.4 実験環境Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定5.3.1 各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーションラミネート方法5.4.1 それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物な線の発光波形の測定5.5.1 α線測定による片側感度の確認	40 40 41 41 42 44 47 47 48 53 54 56
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5	表面汚染測定表面汚染検出原理データ取得のセットアップ5.2.1回路5.2.2光電子増倍管(以下、PMT)5.2.3CAEN 製の Flash ADC5.2.4実験環境Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定5.3.1各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーションラミネート方法5.4.1それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物な線の発光波形の測定5.5.1α線の1st ピークの検証	40 40 41 41 42 44 47 47 48 53 54 56 58
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6	表面汚染剤定表面汚染検出原理データ取得のセットアップ5.2.1回路5.2.2光電子増倍管(以下、PMT)5.2.3CAEN 製の Flash ADC5.2.4実験環境Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定5.3.1各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーションラミネート方法5.4.1それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物な線の発光波形の測定5.5.2α線の1st ピークの検証β の発光波形の測定	40 40 41 41 42 44 47 47 48 53 54 56 58 69
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6	表面汚染練出原理ボータ取得のセットアップ5.2.1回路5.2.2光電子増倍管(以下、PMT)5.2.3CAEN 製の Flash ADC5.2.4実験環境Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定5.3.1各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーションラミネート方法5.4.1それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物5.5.1α線の発光波形の測定5.5.2α線の1st ピークの検証βの発光波形の測定5.6.1エネルギースペクトルの考察	40 40 41 41 42 44 47 47 48 53 54 56 58 69 70
第 第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 6 章	表面汚染測定表面汚染検出原理データ取得のセットアップ5.2.1回路5.2.2光電子増倍管(以下、PMT)5.2.3CAEN 製の Flash ADC5.2.4実験環境Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定5.3.1各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーションラミネート方法5.4.1それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物5.5.1α線の発光波形の測定5.5.2α線の1st ピークの検証βの発光波形の測定5.6.1エネルギースペクトルの考察粒子識別(波形弁別法)	40 40 41 41 42 44 47 47 48 53 54 56 58 69 70 <b>81</b>
第	5 章 5.1 5.2 5.3 5.4 5.5 5.6 6 章 6.1	表面汚染測定         表面汚染検出原理         データ取得のセットアップ         5.2.1       回路         5.2.2       光電子増倍管(以下、PMT)         5.2.3       CAEN 製の Flash ADC         5.2.4       実験環境         Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定         5.3.1       各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーション         ラミネート方法         5.4.1       それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物         な線の発光波形の測定         5.5.1       α線測定による片側感度の確認         5.5.2       α線の1st ピークの検証         βの発光波形の測定          5.6.1       エネルギースペクトルの考察 <b>粒子識別(波形弁別法)</b> PSD 手順	40 40 41 41 42 44 47 47 48 53 54 56 58 69 70 <b>81</b> 81

	6.2.1 作成手順	82
6.3	カイ二乗検定(Persons's $\chi^2$ Test )	85
	6.3.1 解析結果	85
6.4	オリジナルパラメータ	87
	6.4.1 各記号の説明	87
	6.4.2 Window Function	88
	6.4.3 解析結果	89
<b>ANT</b> _ <b>T</b> T		
第7章	結論と将来計画	91
<b>第7章</b> 7.1	<b>結論と将来計画</b> 結論	<b>91</b> 91
<b>第7章</b> 7.1	<b>結論と将来計画</b> 結論	<b>91</b> 91 91
<b>第7章</b> 7.1	<ul> <li>結論と将来計画</li> <li>結論</li></ul>	<b>91</b> 91 91 93
<b>第7章</b> 7.1 7.2	<ul> <li>結論と将来計画</li> <li>結論</li></ul>	<b>91</b> 91 93 93

図目次

2.1	素粒子の標準模型.................................	3
2.2	KamLAND実験で観測された原子炉ニュートリノによる振動。縦軸は反電子型ニュー	
	トリノ( $ar{ u_e}$ )の数で、飛行距離/エネルギーによって増減していることが確認出来	
	$\mathfrak{Z}_{\circ}$ [5]	6
2.3	$0 uetaeta$ 崩壊核のエネルギー準位。通常の $eta$ 崩壊は崩壊後の $^{136}$ Csのエネルギー準位	
	の方が高いため起こらないが、二重 $eta$ 崩壊の場合は崩壊後の $^{136}\mathrm{Ba}$ の方がエネル	
	ギー準位が低いため許される。	8
2.4	二重β崩壊の概略図。(左)通常の二重β崩壊(右)ニュートリノを伴なわない二	
	重 $\beta$ 崩壞。	8
2.5	左の連続スペクトルが 2νββ の場合、右のピークが 0νββ の場合に予測されるエネ	
	ルギースペクトルのイメージ図。 $0 uetaeta$ の際はモノクロのピークがQ値に立つとさ	
	れるが、実際は検出器の分解能により $0\nu\beta\beta$ の場合もこのように広がりを持つ。	9
2.6	KamLAND-Zen 実験によるニュートリノの質量階層構造への制限 [9]	10
2.7	超対称性理論によって拡張された素粒子模型。すべての素粒子に対になる SUSY 粒	
	子が存在するため種類が2倍になる。	13
3.1	KamLAND 検出器の外観図	15
3.2	KamLAND-Zen 実験ナイロン製ミニバルーン [13]。 .............	17
3.3	ニュートリノの電子散乱。ニュートリノが電子と衝突してエネルギーを与え、散乱	
	された電子による液体シンチレータのシンチレーション光を観測する。	19
3.4	KamLAND-Zen 実験で観測された2つの電子のエネルギー和の分布 [14]。観測され	
	たデータ(点)に対し、各反応源でデータを再現している(線)。2.2 <i>MeV~</i> 3.0 <i>MeV</i>	
	が 0νββ の信号領域とされている。	20
3.5	二重β崩壊で期待されるエネルギースペクトル	21
3.6	WIMP-隠し散乱断面積とこれまでの結果の比較。黒実線が XMASS が 2015 年に発	
	表した季節変動の解析により実際に得られた 90%信頼度での上限。緑(1σ)、黄色	
	(2σ)は今回の統計量から予想された上限に対する感度 [23] ........	26
41	シンチレーションフィルム [3]	28
4.2	プラスチックシンチレータでの粒子ごとの発光波形の比較。時間0で同じ強度にな	20
	るようピーク値で規格化されている。[25]	30
4.3	シンチレーションフィルムの蛍光波長と蛍光量。従来のプラスチックシンチレータ	50
		31
4.4	ミニバルーン素材候補の化学構造式	32
		52

4.5	α線の波形。ピーク後の遅発成分の割合が多いため、波形の違いから粒子識別でき		
	ると期待される。		
4.6	分光光度計 U-3900(左)とその内部構造		
4.7	エタノール透過率測定の結果(SF はシンチレーションフィルムの略)		
4.9	測定のセットアップ。装置の詳細は§5.2で述べる。		
4.8	フィルムの洗った回数別の表面の様子。洗浄回数が増えるにつれて傷が多くなって		
	いるのがわかる。		
4.10	黒:洗浄前 青:洗浄後水気を取った後すぐ の <sup>241</sup> Am のエネルギースペクトル。測		
	定全般に関しては§5で詳述するが、ここでは1500 ch から始まるピークが洗浄前		
	後で大きく変化することが確認出来る。 39		
5.1	表面汚染検出原理。透明フィルムでラミネートすることで外部由来のα線を遮蔽		
	し、表面汚染からのα線のみに感度を持たせることができる。 40		
5.2	回路。暗箱はクリーンルーム 41		
5.3	浜松ホトニクス社製の 1.5 inch の R9420 42		
5.4	CAEN 社製 Flash ACD (2-4 Channel 10 bit 2/1 GS/s Digitizer) 43		
5.5	Flash ADC で取得した波形の様子。       43		
5.6	ADC カウントと mV の対応を調べるための回路。クロックジェネレータから出る		
	パルスをアテニュエータで減衰させ、オシロスコープで波高 [mV] を、Flash ADC		
	で波高 [ch] を図った。		
5.7	クリーンルームを上から見た図。HEPA フィルターが2つ設置されており、クリー		
	ンルームの大きさに対し十分な空気の循環が行なわれている。 44		
5.8	リオン社製ハンドヘルドパーティクルカウンタ KC-52 45		
5.9	プラスチック段ボールで作成した暗箱46		
5.10	内部は黒紙で覆っている 46		
5.11	遮光布を3重にして覆い、光漏れを無くしている		
5.12	シミュレーションのジオメトリ 47		
5.13	1mm 厚 PET フィルムのエネルギー損失 48		
5.14	シンチレーションフィルムの厚さごとのエネルギー損失48		
5.15	市販のラミネート加工シートを用いたラミネートの手順50		
5.16	ナイロン製ミニバルーンフィルムを用いたラミネートの手順 52		
5.17	黒:ラミネートシート、赤:ミニバルーンフィルム でラミネートしたときの <sup>241</sup> Am		
	の発光。2つ目のピークの位置がミニバルーンフィルムの方がやや下がっている。  53		
5.18	<sup>241</sup> Amの崩壊図		
5.19	Flash ADC で取得した波形データの一例。左図が横軸時間 [ns] で縦軸が波高 [ch]		
	のそのままの波形で、中央図がペデスタル値のヒストグラム、右図が左図をペデス		
	タル値をゼロとして反転させた波形55		
5.20	<sup>241</sup> Am のエネルギースペクトルと半値幅スペクトル 56		
5.21	左:セットアップA 右:セットアップB 57		
5.22	黒:セットアップA 緑:セットアップB58		

5.23	セットアップ A,B で共通して現れた低エネルギー領域(0 ~ 1500 ch)のピーク .	58	
5.24	シンチレーションフィルムのみの発光測定	59	
5.25	5 PMT そのもののノイズの測定。右は 0~600 ch を拡大したもの。 ......		
5.26	シンチレーションフィルムのみの発光測定	60	
5.27	線源を置かずにシンチレーションフィルムのみで測定したときのエネルギースペク		
	トル。高エネルギーのスペクトルは宇宙線や環境放射線と考えられる。	60	
5.28	線源を置かずにシンチレーションフィルムのみで測定したときの波形。低エネル		
	ギー(380.7 ch)の広がりをもたない鋭いピーク(左)と高エネルギー(3611.5 ch)		
	のピーク(右)	61	
5.29	シンチレーションフィルムのみの発光測定	62	
5.30	α 線のみを置いた測定。HV は 1400 V、Threshold は 850 のまま	62	
5.31	左: <sup>241</sup> Am のシンチレーション光の波形。遅発成分が多いため後半に広がりを持つ。		
	右: <sup>241</sup> Am のみの測定でのイベントの波形。広がりのない信号となっている。	63	
5.32	<sup>241</sup> Am のシンチレーションフィルムでの発光と、 <sup>241</sup> Am のみの場合で検出される信		
	号のエネルギースペクトルを比較した。	63	
5.33	<sup>241</sup> Am、5 mm 厚銅板、シンチレーションフィルムというセットアップ	64	
5.34	黒:シンチレーションフィルムのみ、赤: <sup>241</sup> Am のみ、緑:間に銅板を挟んだセッ		
	トアップ。赤のみピークが広がっている。	64	
5.35	半導体検出器で検出されたエネルギースペクトル。右は低エネルギー領域を拡大し		
	たものである。	65	
5.36	Threshold 黒:9 mV, 赤:39 mV, 緑:89 mV, 青:149 mV, ピンク:189 mV。拡		
	大図。1st ピークは Threshold が小さくなるにつれて左へ移行している。 .....	66	
5.37	<sup>241</sup> Am のエネルギーと半値幅の 2 次元ヒストグラム。ただし信号数を増やすために		
	60 分間測定した。	67	
5.38	黒が元の <sup>241</sup> Amの基本セットアップのエネルギースペクトル。赤が半値幅3以下		
	のイベントを取り除いた後のエネルギースペクトル。低エネルギー領域のピークは		
		67	
5.39	$\alpha$ 線のピークをガウス関数でフィットした様子。	68	
5.40	<sup>90</sup> Srの崩壊凶	69	
5.41		69	
5.42	<sup>50</sup> Sr 緑源の設計図。奥の金皿によって反対側に放出される $\beta$ 線をはね返している。	<u>co</u>	
F 40	[31]	69 70	
5.43	$\beta$ 線 ( $^{\circ\circ}$ Sr) 光元測定の基本セットアック	70	
5.44	$^{\circ\circ}$ Sr のエネルキースペクトルと十個幅スペクトル	70	
5.40	$\rho$ 脉のみの光儿側と	71	
5.40	51 ののの側定相不のエイルイニス・シェル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11	
J.47	ニ・マッテレーションノイルムのの、小己・β ののでの測定相本。たたして二クの 高さを揃えている	71	
5 / 8	里:シンチレーションフィルムのみ 水色: $R$ のみ 赤色: $\alpha$ のみでの測完結里 た	11	
0.40	…・・・・/ ビー・コー・/ 1/24/00/、小□・p 000、小□・0 000 Cの風足相米。た だしピークの高さを描えている	79	
		• 4	

5.49	黒:シンチレーションフィルムのみ、水色:β のみ、ピンク色: <sup>90</sup> Sr での測定結果。	72
5.50	同じセットアップの $\alpha$ 線と $\beta$ 線のエネルギースペクトル $\dots$	73
5.51	$\beta$ の最大のピークのカウント数に $\alpha$ の 1st ピークを揃えたもの。	73
5.52	アクリル板によって紫外線を吸収させた後の信号を見るためのセットアップ...	74
5.53	<sup>90</sup> Sr、シンチレーションフィルム、アクリル板、PMT の測定結果	74
5.54	1st ピーク(水色)と全体(ピンク色)とアクリルを挟んだ場合(青色)の結果を比較	74
5.55	セットアップ	74
5.56	実際に用いた銅板。どちらも 1.5 inch PMT を覆うサイズにカットしてある。	75
5.57	直線コリメート	75
5.58	斜線コリメート	75
5.59	Threshold を下げて行った時のエネルギースペクトルの変化。Threshold が 850 ch	
	(89 mV) のときに 2nd ピークと 3rd ピークの間の谷のように見えていたものは実	
	は Threshold のカットによるものだったことがわかる。	77
5.60	シミュレーションによる β 線のエネルギー損失。左が <sup>90</sup> Sr のエネルギー損失(横	
	MeV 縦カウント)、右が <sup>90</sup> Y のエネルギー損失(横 MeV 縦カウント)	78
5.61	シミュレーションでのフィットの様子。得られた数字を元にエネルギーキャリブレー	
	ションを行った。..................................	79
5.62	プラスチックシンチレータ。縦 33 mm、横 117.5 mm、厚さ 20 mm	80
6.1	粒子ごとのプラスチックシンチレータでの発光の違い	81
6.2	β線の横軸エネルギーと縦軸半値幅の3次元プロット(ただしz軸はLogスケール)	83
6.3	α線の横軸エネルギーと縦軸半値幅の3次元プロット(ただしz軸はLogスケール)	83
6.4	全体の面積のそれぞれの%の値になった時間で各波形データの横軸を揃えて重ね書	
	きした波形	83
6.5	作成した積分波形	84
6.6	エネルギーカットで作成した基準波形。黒がα線でピンクがβ線である。	85
6.7	ペデスタルの様子	86
6.8	$\chi_{\alpha}^2 - \chi_{\beta}^2$ のヒストグラム。黒は <sup>241</sup> Am でピンクは <sup>90</sup> Sr	86
6.9	1p.e. のエネルギースペクトルのフィットの様子	88
6.10	1p.e. の波形	88
6.11	$\frac{y_{alpha}[x]}{y_{beta}[x]}$ 。ただし、 $x < 50$ では 1、 $150 < x$ では 2.6 と固定している。	89
6.12	$\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ のヒストグラム。黒は <sup>241</sup> Am でピンクは <sup>90</sup> Sr	89
7.1	鉛ブロックで囲んでいるイメージ図。ただし見やすさのために PMT や一部の鉛ブ	
	ロックは省いており、実際は全面を鉛で覆うことを想定している。	92
7.2	集光ミラーの試作品。PET にアルミニウムが蒸着されている。[38] ......	94
7.3	小型・大型対象物の表面汚染を集光コーンと組み合わせて測定する。	94
7.4	<sup>232</sup> Th 壞変系列	95
7.5	活性炭処理後の LAB 透過率。赤線は静置法による純化、緑線はカラム法による純	
	化、黒線は未純化 LAB	96

7.6 Rn のバブリング装置外観 [36] ..... 96 7.797 98987.10 LAB の発光イベントを3つの領域に分けて PSD を行った。 ........ 99 7.11 1. $\alpha$ 線または  $\beta$ 線の信号の PSD 結果。左図は  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ 。ほとんどが  $\beta$ -like と見な せる。右図はαが90%以上取得カットをかける前後のエネルギースペクトル。青が 7.12 2. $\alpha$  以外の発光の PSD 結果。左図は  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ 。ほとんどが  $\beta$ -like と見なせる。右図 は α が 90%以上取得カットをかける前後のエネルギースペクトル。青がカット前 

7.13 3. チェレンコフ光と思われる信号の PSD 結果。左図は  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ 。  $\alpha \ge \beta$  のピーク が重なっているように見える。右図は  $\alpha$  が 90%以上取得カットをかける前後のエ ネルギースペクトル。青がカット前で赤がカット後の  $\alpha$ -like のエネルギースペクトル101

# 表目次

3.1	KamLAND-Zen 実験 液体シンチレータの特徴	16
4.1	放射線感受性プラスチックの性能	31
4.2	シンチレーションフィルムと KamLAND の液体シンチレータ(KamLAND-LS)の	
	時定数の比較 [27]	33
4.3	シンチレーションフィルムの Th、U 含有量 [26] ............	34
4.4	洗った回数別のイベント数の比(0 回のときを1とした)	39
5.1	PMT R9420の性能	42
5.2	一般環境下のクリーン度目安(個数)	45
5.3	観測された粒子の粒径ごとの個数.................................	46
5.4	放射線感受性プラスチックの性能	54
6.1	取得効率と残留率	86
6.2	取得効率と残留率	90
7.1	Rn バブリングについて	97

# 第1章 序論

「宇宙は何でできているのか?」「宇宙の始まりはどうなっていたのか?」など、宇宙の歴史 には多くの謎が残っている。宇宙の始まりは1つの小さな点で超高温・高密度状態で、宇宙を構成 するのは「素粒子」だったとされている。つまり宇宙の謎を解明するためには素粒子が大きな鍵を 握っているのである。その素粒子の種類とそれらの相互作用を記述する枠組みとして素粒子の標 準理論がある。標準理論は物理学者が100年もの歳月をかけて築き上げてきた理論であり、2012 年にスイスのジュネーブにある欧州合同原子核研究機関(CERN)にある大型ハドロンコライダー (Large Hadron Collider, LHC)を使った ATLAS実験[1]とCMS実験[2]のヒッグス粒子の発見に より、標準模型を構成する全ての素粒子が見つかった。しかしこれで完成ということではない。標 準理論は宇宙に存在する物質・エネルギーのうち約5%しか説明することができず、標準理論では 説明できない現象もすでに発見されている。その例として、ニュートリノ質量の発見や暗黒物質 が挙げられる。標準理論ではニュートリノの質量はゼロと仮定されていたが、KamLAND実験や スーパーカミオカンデ実験のニュートリノ振動の発見から質量がゼロではないことが導かれ、標 準理論の予言を越えた。さらに、宇宙の大部分を形成する暗黒物質や暗黒エネルギーは標準模型 に含まれない未知の素粒子が寄与していると考えられている。そこで世界中で標準理論を超える 新たな理論の構築や標準理論では説明できない現象の探索が進められている。

日本でもそれらの探索実験が活発に行なわれており、その代表的なものに地下素粒子原子核 実験がある。岐阜県の神岡にある、池の山という鉱山の地下 1000m にいくつもの研究・実験施設 があり、世界中から研究者が集まって地下素粒子原子核研究や、検出技術の開発が行なわれてい る。研究対象は「ニュートリノを伴なわない二重β崩壊」や「暗黒物質」、「天体ニュートリノ」な ど多岐にわたる。

これらの未解明の宇宙の謎に関わる現象は稀にしか起こらないため、観測するためには検出 器を巨大化し、ターゲットとなる物質の数を増やす必要がある。ただし巨大化に伴って現象由来 の信号とは異なるバックグラウンドも増えてしまうため感度が下がってしまっているのが現状で ある。そこでバックグラウンドの原因となる汚染を測定・除去する技術が求められている。本研 究では、多くの実験で感度を下げる一因となっている表面汚染に着目した。表面汚染は素材その ものに含まれる放射性不純物のことではなく、装置の作成・運搬中に、例えば空気中の埃に含まれ る Rn が付着することなどによって起こる汚染を指す。表面汚染の測定器も存在しているが、大 きさや形が限られていたり移動が難しかったりと制限が多いため汎用的ではない。巨大な検出装 置の表面汚染を測定する技術がないため、装置が稼働してデータを取り始めてからでないと汚染 が起きていたかわからず、万が一汚染が発見されてしまった場合は費用も時間も人手もかけて装 置を作り直すなどしなければならなくなってしまう。

そこで、大型な装置にも対応できるほど柔軟な表面汚染測定法の開発に取り組んだ。日本の 企業と大学が共同開発をした特殊な薄型発光プラスチック [3] をフィルム型シンチレータとして用 い、その薄さを利用して表面に付着した汚染のうち $\alpha$ 線に感度をもたせる。さらに $\alpha$ 線と $\beta$ 線の 発光波形の違いから波形弁別法を行った。

本論文において、第2章では宇宙素粒子物理学の研究対象であるニュートリノと暗黒物質の 謎と研究の重要性について説く。第3章ではそれらの稀現象探索実験と、求められる極低放射能環 境について述べ、現状で実験の感度を下げる原因となっている表面汚染について述べる。第4章 では表面汚染を測定するための新しい薄型プラスチックシンチレータについて、第5章並びに第6 章ではそれを用いた表面汚染測定方法と波形弁別法を解説し、第7章では本研究の実用の可能性 を報告する。第8章では本研究の結論、将来計画について述べる。

# 第2章 宇宙素粒子物理学

宇宙素粒子物理学とは、宇宙からの情報を使って素粒子を研究する分野である。宇宙と素粒 子はそのスケールに大きな差があるが、ビックバン直後は超高温・高密度の状態でまさに素粒子の 反応が起きており、宇宙の起源を探るためには素粒子物理学の理解が欠かせない。素粒子物理学 の実験には加速器を用いる加速器物理学と用いない非加速器物理学がある。前者は加速器を使っ て高エネルギー環境を創り出し、未発見だった粒子や現象を発見・解明してきた。今後新粒子を 発見するためにエネルギーを更に高めることが求められており、予算の増大や高エネルギー技術 の革新が進められている。後者の非加速器物理学は宇宙からの飛来粒子の検出や粒子崩壊の観測 がされており、探求対象の「宇宙素粒子」にはニュートリノや暗黒物質の候補粒子が挙げられる。

# 2.1 素粒子

自然界は素粒子からできている。物質は原子からできており、原子は電子と原子核に、原子 核は陽子と中性子に、陽子と中性子はアップクォーク(u)とダウンクォーク(d)に分けること ができる。電子やクォークのようにもうそれ以上分けることのできない粒子を「素粒子」という。 標準模型の素粒子は17個あり、2012年のヒッグス粒子の発見により全てが発見された。

素粒子はフェルミオンとボソンに分けられ、フェルミオンはクォークとレプトンに分かれて いる。標準理論ではクォークとレプトンは6種類ずつあり、それぞれ2個ずつ3世代に分けられ る。ボソンは力を媒介するゲージ粒子と質量を与えるヒッグス粒子にわかれており、グルーオン (g) は強い力を、フォトン (γ、光子) は電磁力を、WボソンとΖボソンは弱い力を媒介する。



図 2.1: 素粒子の標準模型

# 2.2 ニュートリノ

フェルミオンの中で中性な3つの粒子をニュートリノといい、第一世代からそれぞれ電子ニュートリノ ( $\nu_e$ )、ミューニュートリノ ( $\nu_\mu$ )、タウニュートリノ ( $\nu_\tau$ ) と名付けられている。また、世代のことをフレーバーともいう。ニュートリノは電気的に中性で質量が非常に小さいため (レプトンとは小さいという意味である。)物質と相互作用せず検出が非常に困難である。ゆえにニュートリノの性質も他の素粒子と比べて明らかになっていない。

# 2.2.1 ニュートリノの存在予測と発見

ニュートリノの存在を最初に予言したのはオーストリア生まれのスイスの物理学者ヴォルフガ ング・エルンスト・パウリである。当時 β 崩壊は以下のように考えられていた。 粒子 A が β 崩壊して粒子 B に変わるとき、

$$A \to B + e^- \tag{2.1}$$

しかしのちの実験から  $\beta$  崩壊で放射される電子のエネルギー分布が一定にならず、幅の広い 連続スペクトルになることが発見された。多くの物理学者がこの奇怪な現象を説明するための理 論を考え、中にはミクロの世界ではエネルギー保存則が破れるとまで言う物理学者もいた。しか しパウリは  $\beta$  崩壊の際に  $\beta$  線(電子)以外に放射される中性の粒子が存在すれば上手く説明出来 るのはないか、と考えついた。

つまり、本当のβ崩壊は

$$A \to B + e^- + X \tag{2.2}$$

という X 粒子が存在し、それがエネルギーを持ち去るために電子のエネルギーが連続値をとると 提唱したのである。幽霊粒子とも呼ばれたその X 粒子はのちにニュートリノと名付けられ、提唱 から 26 年ほど経ってからアメリカの物理学者ライネスとコーワンによって発見された。また、の ちの 1958 年の実験により、ニュートリノはスピン左巻きのニュートリノと右巻きの反ニュートリ ノのカイラリティしか存在しないことが発見された。もし質量が0 でなかった場合ニュートリノ の速度は光速より遅くなるため、右巻きのニュートリノと左巻きの反ニュートリノも存在するは ずである。そこでニュートリノは質量を持たず光速で動くと仮定された。

#### 2.2.2 ニュートリノ振動

先述の「ニュートリノは質量をもたない」という仮定を破る原因となったのがニュートリノ 振動である。ニュートリノ振動とは、ある弱い相互作用のフレーバー固有状態のニュートリノが 飛行中に他のフレーバー固有状態へと変化する現象であり、ニュートリノに質量がある場合に限っ て起こる。これは1998年にスーパーカミオカンデ実験によって初めて発見されたが、ニュートリ ノ振動発見に至るまでいくつもの問題があった。それらを以下に紹介する。

#### 太陽ニュートリノ問題

太陽内部の核融合によって熱エネルギーとともに電子型ニュートリノも生成されている。この 太陽ニュートリノの観測は1960年代後半からアメリカの物理学者デイビスによって始められた。 1968年に発表された観測結果 [4] から見積もった電子型ニュートリノの観測数は標準太陽模型か ら予想される数の約3分の1しか観測されなかった。この問題は「太陽ニュートリノ問題」と呼 ばれ、のちにスーパーカミオカンデ実験・SNO実験などによって解決されるまでにおよそ30年か かった。なお、このとき既にニュートリノ振動に関する議論は長く行われていた。

#### 大気ニュートリノ問題

ニュートリノ振動の確証は大気ニュートリノ観測実験によって初めて得られた。大気ニュー トリノとは宇宙から降り注ぐ宇宙線ミューオンが大気中の窒素、酸素の原子核と反応して π 中間 子が生成され、その中間子がミューオンに崩壊してミュー型ニュートリノが、更にそのミューオ ンが崩壊して電子型ニュートリノが生成される。

$$\pi^{+(-)} \rightarrow \mu^{+(-)} + \nu_{\mu}(\overline{\nu}_{\mu}) \tag{2.3}$$

$$\mu^{+(-)} \rightarrow e^{+(-)} + \nu_e(\overline{\nu}_e) + \overline{\nu}_\mu(\nu_\mu)$$
(2.4)

(2.5)

上式より、大気ニュートリノを観測するとミュー型ニュートリノと電子型ニュートリノの比 はミュー型:電子型=2:1となることが予想される。しかしカミオカンデの観測結果ではこの比 が理論値と異なることが明らかになった。カミオカンデ実験はチェレンコフ光の放出方向は粒子 の進行方向に依存するという性質によりチェレンコフ光を観測するとニュートリノの飛来方向が わかる。これを利用して真上の大気で生成されてから来るニュートリノと、地球の裏側の大気で 生成され地球内部を通って真下から来るニュートリノの数を調べたところ、下から来るときは電 子型が増えてミュー型が減ることを示唆する結果が得られた。そこで、次の世代であるスーパー カミオカンデの巨大さを生かし、高精度で大気ニュートリノの振動を発見した。また 2001 年から SNO 実験でも太陽ニュートリノの振動現象を発見し、2015 年に両実験グループの代表者にノーベ ル物理学賞が贈られた。KamLAND 実験では原子炉から飛来する原子炉ニュートリノの振動観測 に成功している。

# 2.2.3 ニュートリノ質量階層構造

ニュートリノ振動によりニュートリノは質量を持ち、 $m_1$ 、 $m_2$ 、 $m_3$ の3種類(この分け方はフレーバーの分類とは異なる)あるということが明らかになった。太陽ニュートリノと原子炉ニュートリノの実験結果からは  $|m_1^2 - m_2^2|$ が、大気ニュートリノの実験結果からは  $|m_2^2 - m_3^2|$  が得られたが、

・ニュートリノはなぜ軽いのか

・各ニュートリノの実際の質量



図 2.2: KamLAND 実験で観測された原子炉ニュートリノによる振動。縦軸は反電子型ニュート リノ (*v<sub>e</sub>*)の数で、飛行距離/エネルギーによって増減していることが確認出来る。[5]

は未だ解明されていない。ここでは質量階層構造について説明する。

それぞれのニュートリノの質量は謎のままだが *m*<sub>1</sub> < *m*<sub>2</sub>の関係式は分かっており、ニュート リノ質量の相対関係は3つの階層構造モデルで示されている。

標準質量階層構造(Normal Hierarchy, IH)  $m_1 < m_2 < m_3$ 

逆質量階層構造(Inverted Hierarchy, IH)  $m_3 < m_1 < m_2$ 

縮退構造  $m_1 \sim m_2 \sim m_3$ 

ニュートリノ振動ではこれ以上の制限を与えることが厳しいため、他の実験からのアプロー チが必要となっている。

#### 2.2.4 マヨラナ性

現在考えられている標準理論ではすべての素粒子はディラック粒子とされている。ディラッ ク粒子には電荷のみ異なりそれ以外は一致する反粒子が存在する。しかしニュートリノは中性で あるため、ニュートリノと反ニュートリノを明確に区別する方法は見つかっていない。先述の通 り、実験では左巻きのニュートリノと右巻きの反ニュートリノしか見つかっておらず、ニュートリ ノは質量を持たずに光速で動くと仮定されたが、ニュートリノ振動発見によりニュートリノは質 量を持つため光速では移動できない。つまり、光速などニュートリノよりも速く移動する系から 追い越して見ると、角運動量がそのままで運動の方向が反対の右巻きニュートリノに見える。よっ てもしニュートリノと反ニュートリノの違いがスピンの向きのみであれば、ニュートリノはそれ 自身が反ニュートリノであるといえる。このように粒子と反粒子が同じものである性質をマヨラ ナ性と言い、その性質を持つ粒子をマヨラナ粒子という。ニュートリノがディラック粒子なのか、 それともマヨラナ粒子なのかというのは大きな謎として残っている。

ニュートリノがもしディラック粒子ならば、質量はラグランジアンの中で

$$\mathcal{L}_{mass} = m_{\nu} (\bar{\nu_R} \nu_L + \bar{\nu_L} \nu_R) \tag{2.6}$$

と書ける。ここで*v*<sub>L</sub> は左巻きのニュートリノ、*v*<sub>R</sub> は右巻きのニュートリノであり、反ニュートリ ノも同様に表す。もしニュートリノがディラック粒子だった場合は、右巻きのニュートリノは左巻 きのニュートリノと質量が一致し、相互作用しにくいために発見に至らないということになる。

ここでニュートリノがマヨラナ粒子であるならば、ラグランジアンに現れる質量はニュート リノの場を *v<sup>C</sup>* と書くと

$$\mathcal{L}_{mass} = m_L \bar{\nu_L^C} \nu_L + m_R \bar{\nu_R^C} \nu_R \tag{2.7}$$

と左巻きと右巻きニュートリノの質量項を独立に表せる。よって左巻きニュートリノと右巻きニュー トリノで異なる質量をもたせることができる [6]。

#### 2.2.5 シーソー機構

ニュートリノ振動実験、宇宙論、 $\beta$ 崩壊の研究などからニュートリノの質量は約 1eV という 上限が与えられているが、それは電子よりも5桁以上小さい。この不自然さをニュートリノがマ ヨラナ粒子と仮定して説明できる理論が、柳田、Gell-mann らによって提唱されたシーソー機構 である [7]。マヨラナ粒子と仮定したとき、 $\nu_L$ 及び  $\nu_R$  で構成される質量行列は、

$$\left(\begin{array}{cc} m_L & m_\nu \\ m_\nu & m_R \end{array}\right)$$

と表すことができる。先述の通り、左巻きニュートリノと右巻きニュートリノの質量項をそれ ぞれ定義することができるため、観測されない右巻きニュートリノを非常に重く、左巻きニュー トリノを非常に軽く仮定すると、次の近似が成り立つ。

$$m_{\nu} << m_R \equiv M$$
  
 $m_{\nu} >> m_L \simeq 0$ 

すると、質量行列は

$$\left(\begin{array}{cc} 0 & m_{\nu} \\ m_{\nu} & M \end{array}\right)$$

となり、通常の左巻きニュートリノの質量を m<sub>νL</sub> としたときこれらの関係式は

$$m_{\nu L} \simeq \frac{m_{\nu}^2}{M} \tag{2.8}$$

となり、右巻きニュートリノが非常に重ければ左巻きニュートリノが軽くなることがわかる。例 えば右巻きニュートリノを大統一スケールほどの重い粒子と仮定すると左巻きニュートリノの質 量が極端に軽いことを説明出来る。

# **2.2.6** ニュートリノを伴なわない二重 $\beta$ 崩壊: $0\nu\beta\beta$

ニュートリノのマヨラナ性を確かめるには、例えばニュートリノとニュートリノを衝突させ て対消滅させることができればいいが、反応断面積の小ささから実現は不可能と言える。そこで、 ニュートリノを伴なわない二重  $\beta$  崩壊現象を利用する方法がある。二重  $\beta$  崩壊核では狭い空間内 に2つのニュートリノが同時に生成されるため、もしニュートリノがマヨラナ粒子であれば原子 核内で対消滅することも起こりうる。二重  $\beta$  崩壊核は  $\beta$  崩壊後の原子が崩壊前よりもエネルギー が高いため通常の  $\beta$  崩壊は起こらないが、二重  $\beta$  崩壊後の原子はエネルギーが低いために起こり うる。しかし、非常に稀でありその現象を捉えるには二重  $\beta$  崩壊核を大量に用意する必要がある。



図 2.3:  $0\nu\beta\beta$  崩壊核のエネルギー準位。通常の $\beta$  崩壊は崩壊後の<sup>136</sup>Cs のエネルギー準位の方が 高いため起こらないが、二重 $\beta$  崩壊の場合は崩壊後の<sup>136</sup>Ba の方がエネルギー準位が低いため許 される。



図 2.4: 二重  $\beta$  崩壊の概略図。(左) 通常の二重  $\beta$  崩壊(右) ニュートリノを伴なわない二重  $\beta$  崩壊。

二重  $\beta$  崩壊:  $2\nu\beta\beta$ 

まず、ニュートリノを伴う二重 β 崩壊について説明する。この場合 2 つの中性子がそれぞれ β 崩壊し、

$$2n \to 2p + 2e^- + 2\bar{\nu_e} \tag{2.9}$$

となる。この場合は2つのニュートリノが崩壊の際に運動エネルギーを持ち去ることによって、観 測される2つの電子の合計運動エネルギーは広がりをもつ。

## ニュートリノを伴なわない二重 $\beta$ 崩壊: $0\nu\beta\beta$

続いて、ニュートリノを伴なわない、つまりニュートリノがマヨラナ粒子であり、原子核内 で *v*<sub>e</sub> 同士で対消滅した場合はニュートリノは放出されない。

$$2n \rightarrow 2p + 2e^-$$
 (2.10)

となる。この時、ニュートリノがエネルギーを持ち去らないため、放出される2つの電子の運動 エネルギーの和は一定の値を取る。このエネルギーをQ値といい、Q値は核反応や放射性壊変の 過程で放出(吸収)される全エネルギーを指し、二重ベータ崩壊核によって変わる。



図 2.5: 左の連続スペクトルが  $2\nu\beta\beta$ の場合、右のピークが  $0\nu\beta\beta$ の場合に予測されるエネルギー スペクトルのイメージ図。 $0\nu\beta\beta$ の際はモノクロのピークが Q 値に立つとされるが、実際は検出 器の分解能により  $0\nu\beta\beta$ の場合もこのように広がりを持つ。

このように、エネルギーの値によって  $2\nu\beta\beta$  事象と  $0\nu\beta\beta$  事象は分けることができるが、 $0\nu\beta\beta$  に当たっては未だ観測されていない。[8]

 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の崩壊率は半減期  $(T_{1/2}^{0\nu})$ を使って以下の式で表される。

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 < m_{\beta\beta} >^2$$
(2.11)

 $G^{0\nu}$ は位相空間因子で $M^{0\nu}$ は核行列要素である。<  $m_{\beta\beta} >^2$ はマヨラナ有効質量で、

$$|\langle m_{\beta\beta}\rangle| \equiv ||U_{e1}^L|^2 m_1 + |U_{e2}^L|^2 m_2 e^{i\phi_2} + |U_{e3}^L|^2 m_3 e^{i\phi_3}|$$
(2.12)

で表される。 $U_{e1}^L \geq U_{e2}^L \geq U_{e3}^L$ は三世代ニュートリノの混合行列で、Pontecorvo-Maki-Nakagawa-Sakata (PMNS) または Maki-Nakagawa-Sakata (MNS) 行列と呼ばれている。 $e^{i\phi_2} \geq e^{i\phi_3}$ はマヨ ラナ CP 位相である。 これらの関係式から、 $0\nu\beta\beta$  崩壊の半減期を測定することで、ニュートリノ の有効質量を求めることができ、質量階層構造への制限をかけることができる。



図 2.6: KamLAND-Zen 実験によるニュートリノの質量階層構造への制限 [9]

## **2.2.7** 物質優勢宇宙の謎

0νββが発見されれば、ニュートリノのマヨラナ性が証明され、その寿命から絶対質量を得る ことができる。ただしそれだけではなく、宇宙初期におきた「消えた反物質の謎」にも迫ること ができる。

もしニュートリノがマヨラナ粒子だった場合、マヨラナ粒子はレプトン数を保存しないため、 ニュートリノ質量がレプトン数の破れを示す量となる。粒子数保存則の破れは、現在の宇宙が物 質優勢であることを説明する鍵となる。現段階で、ニュートリノがマヨラナ性を持つかを確かめ る実現可能な手段は二重ベータ崩壊の探索とされている。

# 2.3 暗黒物質

1933年、カルフォルニア工科大学のフリッツ・ツヴィッキーは何千個もの銀河を含むかみの け座銀河団の観測をした。その際に個々の銀河が移動する速度がとても速く、銀河団内に含まれ る全ての星の重力から予想される速度を遥かに上回ることに気がついた。もし星の総量に誤りが なければ、1つ1つの銀河はとてつもない速さで銀河団から遠ざかっていかないと説明がつかな い。そこでツヴィッキーは銀河団の質量と個々の銀河の速度の矛盾を解消させるために、かみのけ 座銀河団の中には星の他に大きな質量をもつ物質があり、その物質の重力によって銀河は加速さ れているのだと仮定した。[10] その謎の物質は光を発せず、望遠鏡で観測することができないため Dark Matter 、暗黒物質と名付けた。

ッヴィッキーの観測からおよそ 40 年後、1970 年代の終わりに渦巻銀河の回転速度分布から光 では観測できないものの重量を生じさせる物質の存在が明らかになった。また、重い天体によっ て光が湾曲する重力レンズ効果の観測や宇宙の大規模構造のシミュレーションなどによってその 存在が示されており、我々の太陽系近傍にもおよそ 0.3GeV/cm<sup>3</sup>の密度で存在すると考えられて いる。また宇宙マイクロ波背景放射(Cosmic Microwave Background、CMB)の観測によって宇 宙の質量とエネルギーの総量が明らかになり、通常物質は宇宙の5%でしかないことがわかって いる。

#### 2.3.1 暗黒物質の候補

暗黒物質の条件は、

- 中性であること
- 非相対論的速度をもつこと
- 安定であること

が挙げられる。暗黒物質の候補として考えられているものは、WIMP (Weakly Interacting Massive Particles)、アクシオン、ステライルニュートリノ、隠れたセクターの暗黒物質、WIMPZILLA、 ミラー物質など数多くある。その中でも、暗黒物質とは関係ない理論から導かれるものであると いう理由で、有力候補に挙げられているものは WIMPs とアクシオンである。

なお、以前はニュートリノが暗黒物質の正体ではないかと考える研究者も多くいたが、1980 年代の銀河形成のシミュレーションによってその考えの間違いが指摘されてきた。ニュートリノ は質量がとても軽く亜光速で移動するため、ニュートリノが宇宙の大部分の質量を占めていると 仮定すると、通常物質もニュートリノに引きずられてしまい銀河を形成することができなくなっ てしまう。このため、ニュートリノは暗黒物質の候補から外された。

#### 2.3.2 アクシオン

量子色力学(quantum chromodynamics、QCD)は強い相互作用を記述する量子論であり、 陽子や中性子、中間子などのハドロンは QCD によって記述される。QCD は強い力を矛盾なく上 手く説明することができるが、CP 対称性についての説明は上手くいっていない。あらゆる物理学 実験では 強い相互作用の CP 対称性(粒子の電荷・空間を反転させても物理法則は変わらない) を 保存するという結果が出ているが、QCD では強い相互作用の CP 対称性は破れるようになって いる。これは強い CP 問題と呼ばれている。これを解決するためにアクシオンという新粒子を予 言する模型が考え出された。このアクシオンは質量が軽く、速度が遅く、宇宙空間に大量に存在 するされている。また、光子と反応する特徴があるため、磁場とアクシオンの反応によって光子 を作ること(逆プリマコフ変換)を利用して探索されている。

## 2.3.3 WIMP

WIMP とは弱い相互作用しかしない未知の重い素粒子と言われている。質量は陽子の10~ 100 倍と観測によって暗黒物質は通常の物質と強い相互作用も電磁相互作用もしないことがわかっ ているため、発見するためには弱い相互作用の反応を観測することが必要である。

WIMP が暗黒物質の有力候補となっている理由の1つに「WIMP の奇跡」がある。宇宙初 期は WIMP も他の粒子と飛び回っており、WIMP の大半は自分自身が反粒子であるために対消 滅したとされている。粒子と反粒子が衝突して対消滅を起こす頻度は弱い相互作用で決まってい るが、その後宇宙膨張に伴い宇宙も冷えていったため弱い相互作用は起こりづらくなり、WIMP も対消滅しなくなった。つまり、現在どれだけの WIMP が残っているかは弱い相互作用からわか り、その量が暗黒物質問題を解決するのにちょうどいい値となっていることから、WIMP は有力 視されるようになった。

またもう1つの理由として、素粒子の標準理論を数学的に拡張した超対称性理論(Supersymmetry、SUSY)から自然に予言されるということがある。SUSYはスピンが整数と半整数で異な るボソンとフェルミオンを関係付けることができ、更に標準理論に重力を組み込んで4つの力の 統一につながると予測されている。SUSY理論では全ての素粒子に超対称性のペアが存在すると されており、クォークにはスクォーク、レプトンにはスレプトン、光子にはフォティーノ、グラビ トンにはグラビティーノ、W粒子にはウィーノ、Z粒子にはズィーノ、ヒッグス粒子にはヒグシー ノと、それぞれ対になっている。暗黒物質の候補としてもっとも軽い超対称性粒子(LSP)が考え られているが、LSPとしての可能性が高いものがニュートラリーノで、フォティーノとズィーノ と中性ヒグシーノの量子的混合状態である。ニュートラリーノは電荷を持たず、マヨラナ粒子で あるために、暗黒物質の現在の存在量が予測できる「WIMPの奇跡」の条件にも当てはまる[11]。



図 2.7: 超対称性理論によって拡張された素粒子模型。すべての素粒子に対になる SUSY 粒子が存在するため種類が 2 倍になる。

# 第3章 地下素粒子原子核実験

前章で述べた非加速素粒子実験施設の多くは日本の岐阜県飛騨市神岡にある。

本誌ではその中の 0<sub>ν</sub>ββ探索を行っている KamLAND-Zen 実験と暗黒物質探索を行っている XMASS と、世界で行なわれている暗黒物質探索実験について説明する。その実験を高感度にす るために求められている環境や感度を下げる原因となっている表面汚染について述べる。

## 3.0.1 宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究

新学術領域「宇宙の歴史をひもとく地下素粒子原子核研究」では、極低放射能環境のもと宇宙 初期の物質粒子生成、軽いニュートリノの謎、暗黒物質の謎、星形成の歴史、現在の天体活動な どを探究している。

宇宙素粒子物理学において地下で実験を行うことで、あらゆる実験でバックグラウンドとな る宇宙線ミューオンが地表の約10万分の1にまで減少されるなど利点が多くあり、世界中で研究 が行なわれている。この新学術領域ではこれまでは実験グループごとに進められていたが、より 技術を高め最先端の研究活動を行うために、個々の持っている技術や知見を集め、組織間で連携 して知の共有・融合をすることを目指している。

# 3.1 $0\nu\beta\beta$ 探索実験:KamLAND-Zen

先述した新学術領域では、第2章で述べた  $0\nu\beta\beta$  探索実験がいくつか行なわれている。日本 でのニュートリノ観測実験の多くは岐阜県神岡鉱山の山頂地下 1,000m で行われている。これは先 述の通り地表に降り注ぐ宇宙線ミューオンを遮蔽するためで、岩盤の遮蔽によりフラックスを~  $10^{-5}$  に下げている。本誌ではその中の大型の液体シンチレータ検出器 KamLAND を用いて、低エ ネルギーのニュートリノ事象観測を目指して始まった <u>Kam</u>ioka <u>Liquid-scintillator Anti-N</u>eutrino <u>Detector(KamLAND)</u> 実験について説明する。



図 3.1: KamLAND 検出器の外観図

KamLAND-Zen は Xe を溶かし込んだ液体シンチレータを用いた実験であるが (§ 3.1.1)、Xe の量に応じて呼称が変わる。Xe 含有量が~400kg での実験を KamLAND-Zen400 と言い、2011 年 10 月から 2012 年 6 月までを KamLAND-Zen400 の第 1 フェーズ、2013 年 12 月から 2015 年 10 月 を KamLAND-Zen400 の第 2 フェーズと呼ぶ。更に溶かし込む Xe を増量させておよそ 800kg に する実験を KamLAND-Zen800 といい、現在準備が進められている。

# 3.1.1 KamLAND-Zen 検出器の構造

KamLAND-Zen 検出器は最外層が巨大な水タンクになっており、その内側に直径 18m の球 形タンクが設置されている。最外層の水タンクは外側検出器(outer detector、 OD)と呼ばれ、 20 inch の光電子増倍管約 140 本が宇宙線による発光を捉え、宇宙線の信号とニュートリノの信号 を区別している。18m のタンクはニュートリノ検出用の内側検出器(inner detector、ID)であり、 17 inch の光電子増倍管 1325 本と 20 inch の光電子増倍管 554 本が配置されている。球形タンク 内は発光しない鉱物油で満たされていて、さらにその内側に 1000 トンの液体シンチレータを入れ た直径 13m の透明なバルーンが吊り下げられており、発光性の液体シンチレータが封入されてい る。KamLAND-Zen 実験ではこの中にさらに小さな直径 3.08m のミニバルーンがインストールさ れており、その中には二重  $\beta$  崩壊核の <sup>136</sup>Xe が溶かし込まれた液体シンチータが入れられている。

## 3.1.2 二重 $\beta$ 崩壊核:<sup>136</sup>Xe

天然に存在する二重  $\beta$  崩壊核で、実際にその崩壊が観測されたものは 10 種類しかないが、 KamLAND-Zen 実験では <sup>136</sup>Xe を用いている。これを選択したのは、液体シンチレータに溶けや すいこと、濃縮が容易であること、使用後も液体シンチレータから回収・再純化可能であること が理由にある。

# 3.1.3 液体シンチレータ:KamLAND-LSとXe-LS

KamLANDではシンチレータとして主成分が油の液体シンチレータを用いてシンチレーション光を観測している。外側の直径 18m バルーンに入っている液体シンチレータのことを以下では KamLAND-LS と呼び、ミニバルーンの中に入っている<sup>136</sup>Xe が溶かされた液体シンチレータの ことを Xe-LS と呼ぶ。

はじめに KamLAND-LS の説明をする。発光剤として用いられているのは PPO (2,5 ジオフェ ニルオキサゾール)であり、溶媒としては密度が 0.88g/cm<sup>3</sup> のプソイドクメン (1,2,4 トリメチル ベンゼン、PC)、密度調整及び透過率低下を防ぐためのミネラルオイルとしてドデカン (N-12) が用いられている。同じくニュートリノ観測を行っているカミオカンデ実験、スーパーカミオカ ンデ実験は荷電粒子が純水によるチェレンコフ光を観測している。主成分が油であるということ は水と比べて溶ける不純物が少なく、極低放射能環境の実現にも適している。また液体シンチレー タの発光量の大きさによって電子の最低検出可能エネルギーが、カミオカンデの 6.5 MeV とスー パーカミオカンデのおよそ 4 MeV と比較して、KamLAND は約 0.2 MeV と格段に低く、低エネ ルギーニュートリノの検出に適している。また、ニュートリノ反応で放出される中性子がシンチ レータ中の水素原子に吸収されて放出される 2.2 MeV の γ線を観測できるため、中性子の検出が 可能となっている。実験は 2002 年から開始され、原子炉反ニュートリノによるニュートリノ振動 の測定、地球反ニュートリノの観測、太陽ニュートリノの観測を行ってきた。

表 3.1: KamLAND-Zen 実験 液体シンチレータの特徴

容量	1,000 t
発光量	500  p.e./MeV
エネルギー閾値	$\sim 0.2 { m MeV}$
観測対称	原子炉反ニュートリノ
	地球反ニュートリノ
	低エネルギー太陽ニュートリノ
	核子崩壊 など

続いて Xe-LS の説明をする。ミニバルーンは厚さが 25 μm のナイロン製なので壊さないた めと、内部での発光が屈折などの光学的影響を受けずに光電子増倍管に届くために、KamLAND-LS と Xe-LS の密度は揃えなくてはならない。Xe を溶かし込むため密度が増加する分、ドデカン (N-12)の代わりにデカン (N-10)を使うなど KamLAND-LS とはやや組成が異なっている。

# 3.1.4 ミニバルーン

検出器の中で最も中心にあるミニバルーンはナイロンでできている。感度を良くするために 素材そのものに含まれる放射性物質に厳しく制限をかけており、厚さも 25 μm という極めて薄い ものである。作成は東北大学西澤潤一記念研究センターのクリーンルームで行われる。ナイロン フィルムを舟形のゴア 24 枚に切り、それぞれを溶着線(図 3.2 の点線)に沿って溶着している。こ のナイロンフィルムは 370~450nm の波長の光に対して 99%以上の透過率を持つ [12]。



図 3.2: KamLAND-Zen 実験ナイロン製ミニバルーン [13]。

# 3.1.5 光電子增倍管 (PMT)

光電子増倍管(以下、PMT)とは高感度の光センサーであり、光電面に入射した光を増幅させて信号として出力する。

KamLAND 検出器に使われている PMT は、17 inch のものと 20 inch のものがある。20inch の方はカミオカンデ実験で用いられていたものに耐油加工をしたもので、17 inch は新たに開発された時間応答の良いものである。

# 3.2 ニュートリノ検出原理

KamLAND 検出器では液体シンチレータと PMT を用いてニュートリノを検出する。荷電粒子 が液体シンチレータを通過するときに起こる電離損失のエネルギーが、液体シンチレータ中の発 光物質分子を励起し、シンチレーション光が放出される。そのシンチレーション光を光電子増倍 管が捉えて発光量を測定することで、荷電粒子を検出する。ニュートリノそのものは検出できな いが、ニュートリノが液体シンチレータ中で粒子と相互作用するとき、その反応を検出すること で中性粒子であるニュートリノを観測する

## 3.2.1 反電子ニュートリノ検出

第一は検出器に入射した反電子ニュートリノと液体シンチレータ内の陽子が反応して起こる逆 ベータ崩壊である。(式 3.1)

$$\bar{\nu}_e + p \to n + e^+ \tag{3.1}$$

実験系においてこの反応のエネルギー保存則は以下の式で表される。

$$E_{\bar{\nu}_{e}} + m_{p} = (T_{n} + m_{n}) + (T_{e^{+}} + m_{e})$$
(3.2)

このとき陽電子はすぐに周りの電子と対消滅を起こすので 0.511 MeV の  $\gamma$  線を 2 つ放出する。こ れが先発信号でありエネルギーを  $E_{prompt}$  とすると、

$$E_{prompt} = T_e^+ + 2m_e \tag{3.3}$$

$$= E_{\bar{\nu}_{e}} + m_{p} - (T_{n} + m_{n}) + m_{e} \tag{3.4}$$

$$= E_{\bar{\nu}_{e}} + T_n - 0.782[MeV] \tag{3.5}$$

と表せる。ただし、 $m_p, m_n, m_e$  はそれぞれ陽子、中性子、電子の質量であり、 $T_n$  は中性子の運動 エネルギーである。よって、実際に検出される反電子ニュートリノのエネルギーは、中性子の平 均運動エネルギー $\overline{T}_n$  より、以下の式 3.6 で表される。

$$E_{\bar{\nu}_{e}} = E_{prompt} - \bar{T}_{n} + 0.782[MeV] \tag{3.6}$$

また、熱中性子と呼ばれる運動エネルギーをほとんど持たない中性子が時定数 210[ $\mu$ s] で陽子と 結合する中性子捕獲反応を起こし、2.2[MeV] の  $\gamma$  線を放出する。これを後発信号とする。

これらの連続した2つの信号を遅延同時計測を行うことで特定し、バックグラウンドの中から 反電子ニュートリノイベントを検出することができる。また、逆 $\beta$ 崩壊では、 $m_p$ よりも ( $m_n+m_e$ ) の方が質量が大きいため、反電子ニュートリノのエネルギーに閾値が存在する。相対論効果を考 慮すると、エネルギー閾値は以下の式で表される。

$$E_{\bar{\nu}_e}^{threshold} = \frac{(m_n + m_e)^2 - m_p^2}{2m_p} = 1.806[MeV]$$
(3.7)

また、たとえば

$$p + \bar{\nu_{\mu}} \to n + \mu^+ \tag{3.8}$$

の反応のエネルギー閾値は、

$$E_{\bar{\nu}_{\mu}}^{threshold} = \frac{(m_n + m_{\mu})^2 - m_p^2}{2m_p}$$
(3.9)

$$= \frac{(939.6[MeV] + 105.7[MeV])^2 - 938.3[MeV]^2}{2 \times 938.3[MeV]}$$
(3.10)

$$= 113.1[MeV]$$
 (3.11)

となるため、低エネルギー領域で起こりうる逆ベータ崩壊は反電子ニュートリノ *v<sub>e</sub>* によるものの みである。逆ベータ崩壊反応による信号と他の信号を識別できれば、反電子ニュートリノとその 他のニュートリノを区別することができる。

### 3.2.2 電子散乱によるニュートリノ検出

反電子ニュートリノの検出の他に、他のフレーバーのニュートリノも検出することができる。 その反応はニュートリノと液体シンチレータ中の電子との弾性散乱である。反応の様子は以下の 式で表される。

$$\nu_x + e^- \to \nu_x + e^- \quad (\hbar \, \hbar \, \iota \, x = e, \mu, \tau) \tag{3.12}$$

ニュートリノにエネルギーを与えられた反跳電子が液体シンチレータ中を走り、その発光を 見ることで観測することができる。



図 3.3: ニュートリノの電子散乱。ニュートリノが電子と衝突してエネルギーを与え、散乱された 電子による液体シンチレータのシンチレーション光を観測する。

# 3.3 バックグラウンド

極低放射能環境で観測を行い、世界最高レベルの感度をもつ KamLAND-Zen 実験だが、 $0\nu\beta\beta$  探索のためには更なるバックグラウンド除去技術が求められる。ここでは KamLAND-Zen400 で の主要なバックグラウンドを紹介する。

# 3.3.1 $0\nu\beta\beta$ 事象のバックグラウンド

観測する目的の信号と誤って認識してしまう可能性のある背景事象をバックグラウンドと呼 ぶ。ニュートリノ観測実験や暗黒物質探索などの稀現象観測実験では極めてバックグラウンドを 少なくしなければならない。ここでは KamLAND-Zen 実験で問題となっているバックグラウンド を紹介する。

前述した通りニュートリノを伴わない二重β崩壊は、2つの電子によるシングルイベントであり、 2.2*MeV*~3.0*MeV*領域が探索事象の信号と言われている。以下に主なバックグラウンドを記す。

#### ミニバルーン表面: $^{110m}$ Ag

このバックグラウンドはミニバルーンのインストール時には予想されていなかった。考えら れる理由としては、東日本大震災の時の福島第一原子力発電所の事故により生成された<sup>110m</sup>Agが



図 3.4: KamLAND-Zen 実験で観測された 2 つの電子のエネルギー和の分布 [14]。観測されたデー タ (点) に対し、各反応源でデータを再現している (線)。 $2.2MeV \sim 3.0MeV$  が  $0\nu\beta\beta$  の信号領 域とされている。

宮城県仙台市でのミニバルーン作成過程で表面に付着した可能性や、二重β崩壊核である<sup>136</sup>Xe を輸送する途中に原子核破砕によって混入した可能性がある[13]。これは液体シンチレータを蒸 留純化することによって10分の1以下まで低減させた[15]。

### 宇宙線ミューオンによる原子核破砕生成核: $^{10}$ C

宇宙線ミューオンが2000分の1以下になる神岡鉱山の地下であっても、KamLANDでは約0.3Hz でミューオンを検出している。ミューオンが液体シンチレータ中の<sup>12</sup>Cと相互作用することで原 子核破砕が起こり、<sup>10</sup>Cが生成される。<sup>10</sup>Cはエネルギースペクトルが $0\nu\beta\beta$ 領域とかかるため感 度を下げているが、MoGURAの導入によって<sup>10</sup>C生成時に放出される中性子を特定できるよう になった。この除去効率は90%である。なお、同様に<sup>11</sup>Beも生成されるが、イベント数も少なく ミニバルーンの有効体積においては無視できる値である。[16]



# 太陽ニュートリノイベント:<sup>8</sup>B solar $\nu$

太陽の核融合連鎖反応により生成される<sup>8</sup>Bが、逆β崩壊すると電子型ニュートリノが生成される。このニュートリノによるイベントを特定することは極めて困難であるが、<sup>11</sup>Beと同様に無視できる値となっている。

#### ミニバルーン素材に含まれる放射性不純物:<sup>214</sup>Bi

ミニバルーンはナイロンでできている。このナイロン素材そのものには自然放射線核種である <sup>238</sup>U、<sup>232</sup>Th、<sup>40</sup>K系列の放射性元素が混入または付着している。もともと素材に混入量の少ない 素材を選ぶことで低減させているが完全に防ぐことは困難であり、更にクリーンルーム環境下で作 成していても運搬時に表面に付着してしまうことがゼロだとは言い切れない。実際に KamLAND-Zen400 ではミニバルーン表面で想定よりも1桁多く<sup>214</sup>Bi が見つかった。考えられる放射性元素 のうち特に <sup>238</sup>U の娘核である <sup>214</sup>Bi の出す約 3.27 MeV の  $\beta/\gamma$ 線が 0 $\nu\beta\beta$  付近にスペクトルを持 つために無視できず、<sup>110m</sup>Ag の除去後は最大のバックグラウンドとなる。

# $^{136}$ Xe による $2\nu\beta\beta$

 $0\nu\beta\beta$ の信号によるエネルギースペクトルは原理的には広がりがないものとなるが検出器の分解 能によりピークは幅を持つ。このため  $2\nu\beta\beta$ の信号と重なる部分が出てくる。この二重  $\beta$  崩壊核 を使う以上  $2\nu\beta\beta$  は除去することが不可能なため、分離させるにはエネルギー分解能を改善させ るしかない。

# 3.3.2 ミニバルーンの表面汚染

先述のとおり、KamLAND-Zen400 実験ではミニバルーンに想定外の表面汚染が起こった。ミ ニバルーンの素材そのものに含まれる放射性不純物は質量分析で測定されており、表面汚染とし て見つかった <sup>110m</sup>Ag と <sup>214</sup>Bi は事前には見つからなかった、または量が少ないことが確認されて いた。<sup>214</sup>Bi に関して言うと、ミニバルーンの素材であるナイロン 6 フィルムは、作成前は <sup>232</sup>Th は 6 × 10<sup>-12</sup>g/g、<sup>238</sup>U は 2 × 10<sup>-12</sup>g/g と、後述するミニバルーンフィルムの要求(§5.4)を満た していることが確認されていたが、KamLAND-Zen400 の第 1 フェーズでは 1 桁多く、<sup>232</sup>Th は 79±3 × 10<sup>-12</sup>g/g、<sup>238</sup>U は 14±1 × 10<sup>-12</sup>g/g となってしまっていた [17]。これは Bq/m<sup>2</sup> を使っ て表すと~10 $\mu$ Bq/m<sup>2</sup>である。これらの汚染のため、約 1 年 5 ヶ月間かけて液体シンチレータの純 化を行い、ミニバルーンは Xe を 800 kg まで増量する KamLAND-Zen800 に向けて作成環境・手 順を改善して新しく作成している。

# 3.4 KamLAND-Zen 実験の成果

様々なバックグラウンドが見つかったものの蒸留純化・フィルターでの濾過・バックグラウンドイベント特定による除去によって、KamLAND-Zen 実験は世界最高感度をもっている。現段階では  $0\nu\beta\beta$ の検出は実現していないものの、400 kg Phase の結果から <sup>136</sup>Xe0  $\nu\beta\beta$ の半減期については、 $T_{0\nu} > 1.07 \times 10^{26}$ year (90% C.L.) という制限とニュートリノのマヨラナ有効質量に対しては <  $m_{\beta\beta} ><$  (61 - 165) meV(90% C.L.) という上限値を与えている。[9]

# **3.5 暗黒物質探索の方法**

暗黒物質探索は3種類の方法がある。

- 加速器による生成 … 陽子-陽子衝突により SUSY 粒子を生成し、反応を観測する
- 直接検出 … 暗黒物質と原子核の原子核反跳を捉える
- 間接検出 … 暗黒物質の対消滅によって生成される粒子を捉える

本誌では WIMP の直接検出実験について説明する。[11]

直接検出において検出器内で WIMP が相互作用する頻度は、素粒子物理学での WIMP の相 互作用と、宇宙物理学の銀河ハローにおける WIMP の分布から計算される。素粒子物理学の観点 からは、WIMP が原子核の中の核子とそれぞれ相互作用するため、それぞれの寄与が足し合わさ れると WIMP 衝突回数の増加率は質量数の4乗に比例する。ゆえに標的は重い原子核であるほど 良い。宇宙物理学の観点からは、地球は太陽の周りを回っており、太陽を含む銀河系ディスクも 銀河系中心の周りを公転しているが、WIMP はそれぞれの運動方向がバラバラなため、平均する と太陽は WIMP の風の中を動いていることになる。その結果 WIMP の検出数は6月に最大とな り12月に最小になると計算により求められている。

暗黒物質探索は世界中で行われているが、5~10GeVの軽い暗黒物質を発見したと主張する グループもそれを否定するグループもあるため確証は得られておらず、世界中で誰よりも早く確 実な結果を出そうと実験が進められている。

# 3.6 暗黒物質探索実験:XMASS

神岡鉱山で行なわれている暗黒物質探索実験に XMASS 実験がある。ニュートリノ観測実験 と同様、暗黒物質探索実験においても地下で宇宙線ミューオンを遮蔽できるというのは重要であ る。「XMASS」という名称は略称であるが、正式名称は3通りで、

- <u>X</u>enon detector for weakly interacting <u>MASS</u>ive particles (弱い相互作用をする重い粒子 検出用のキセノン測定器)
- <u>Xenon MASS</u>iive neutrino detector (キセノンを用いた巨大ニュートリノ測定器)
- <u>X</u>enon neutrino <u>MASS</u>idetector (キセノンを用いたニュートリノ質量測定器)

がある。本誌では1番目に紹介した Xenon detector for weakly interacting MASSive particles (弱い相互作用をする重い粒子検出用のキセノン測定器)について説明する。

# 3.6.1 XMASS 検出器の構造

XMASS 検出器は最外層が巨大な水タンクになっており、その内側に無酸素銅製の液体 Xe タ ンクが設置されている。最外層の水タンクは外側検出器(outer detector、 OD)と呼ばれ、外部 からの中性子と γ線の遮蔽材の役割や宇宙線ミュオンなどのチェレンコフ光を検出して宇宙線を veto する役割を担っている。OD は直径 10 m、高さ 10.5 m の円筒形で壁には 72 本の PMT が取 り付けられている。内側の無酸素銅製のタンクは内側検出器(inner detector、ID)であり内部に 約 1t の液体 Xe が入っている。この液体 Xe は-100 度に保たなければならないため無酸素銅製の 真空断熱容器で作られている。ID の内側には更に 60 面体の構造体があり、その内側には 642 本 の PMT が取り付けられている。この PMT は六角形型 630 本と丸型 12 本を組み合わせることで、 構造体の面積の 62.4%をカバーしている。[18]

# 3.6.2 液体キセノン

XMASS は暗黒物質の候補である WIMP の探索を行っており、そのためには重い原子核が必要である。重い原子核の中で、十分にシンチレーション光を発すること、固有のバックグラウンドとなる可能性のある長寿命のアイソトープがないことなどから液体 Xe が標的として選ばれた。 Xe の中に Ar や Kr が含まれていた場合、アイソトープからのバックグラウンドが発生してしまうが、XMASS 実験は高効率な蒸留装置を開発し、Kr を ppt レベルまで除去することができる。更に Xe は密度が約 3g/cm<sup>3</sup> であることから、液体 Xe そのものが γ線を遮蔽でき、γ線が中心部に入ることを防ぐ。このことを自己遮蔽効果という。[19]

# 3.6.3 PMT

用いる PMT は XMASS 実験用に特別に開発されたものである。先述の通り、6 角形のものと 丸型のものがある。-100 度の液体 Xe 中でも使え、液体 Xe の放出するシンチレーション光の波長 (178 nm)にも感度を持つように作られ、更には放射性同位体の含有量が少なくなるよう設計さ れている。

# 3.7 暗黑物質検出原理

WIMP が Xe 原子核にぶつかり反跳することで液体 Xe から出るシンチレーション光を観測 する。発光過程を以下に記す。[20]、[21]

まず WIMP が原子核に衝突すると  $Xe^+$  と励起子  $Xe^*$ 、  $Xe^{**}$  ができる。これらが励起二量体  $Xe_5^*$  を経て基底状態に戻るときに 178 nm のシンチレーション光を出す。その発光過程の一例が

$$Xe^* + Xe \to Xe_2^* \to 2Xe + h\nu \tag{3.13}$$

である。§2で説明したように銀河ハロー起源の暗黒物質は季節ごとに反応数が異なる。(1年の前 半では地球は太陽と同じ方向に動くため銀河内での速度が速くなるので多くのダークマターとす れちがうことになる。後半は逆方向に動くため遅くなる。)

# 3.8 検出器表面のバックグラウンド

しかし、このコミッショニングラン中は外部由来のバックグラウンドが想定よりも2桁大き かった。詳細な調査の結果、原因は PMT 表面のクォーツガラスと金属側面の間にシール材として
使用したアルミニウムと特定された。このアルミニウムはγ線を検出できる高純度 Ge 検出器など を用いてスクリーニングを行っていたが、アルミニウムから放射されるγ線のエネルギーが比較的 低かったために検出効率が悪く見つけることができなかった。また、PMT の銅製ホルダーの表面 にも<sup>210</sup>Pb が付着していることが分かった。これらの検出器表面の汚染から来るイベントは有効 体積(FV)カットによって取り除くことを想定していたが、イベントの一部はFV 内の事象と誤 判定してしまうことが分かった。このように低エネルギー領域では検出器表面に汚染があると主 要なバックグラウンドとなる。表面汚染の低減のため、リング、プレート部分は電解研磨を行い、 PMT の窓表面も希硝酸による洗浄を行った。これらの改修作業が完了した後 2013 年 11 月末から 観測が再開された。その観測結果より、バックグラウンドが約1桁低減したことが分かった。[22]

# 3.9 XMASS 実験の成果とその他の暗黒物質探索実験の現状

XMASS は 2010 年末から 2012 年 5 月までコミッショニングランを行った。そのデータによ りいくつもの成果が得られているが、ここでは非弾性散乱を用いた WIMP 探索について述べる (ICRR ニュース)。WIMP と原子核が非弾性散乱して励起し、脱励起の際に  $\gamma$  線と電子が放出さ れるが、XMASS はこのときに起こる電子反跳事象に対してバックグラウンドが低いために高い 感度を持っている。中心から半径 15 cm の領域において約 3 × 10<sup>-4</sup>/day/keV/kg という、後述す る LUX 実験よりも 1 桁低いバックグラウンドレベルを達成した。[22]

ここでその後の XMASS の成果について説明する前に、暗黒物質探索実験を行っている他の 2つのグループを紹介する。

#### 3.9.1 暗黒物質を発見したと主張する DAMA/LIBRA 実験と反発するその他の実験

GranSassoの地下に設置された検出器で、季節変動の起こる銀河ハロー起源の暗黒物質が標 的 NaI の原子核と衝突し、反跳された原子核を検出する仕組みになっている。DAMA 実験グルー プは 1997 年に反跳された原子核のイベントは 6 月頭にピークを迎える季節変動を検出し、暗黒物 質を発見したと主張した。更に 2008 年に DAMA/LIBRA 実験で再現し、季節変動を 9.2σ の優位 性で検出し 5 月下旬にピークがあったと発表した。しかしその後 Xenon100 実験や CDMS 実験に 反発されることになる。発見を否定する実験グループは、DAMA が主張する季節変動は暗黒物質 以外の粒子からも引き起こされるため、DAMA が見ているのはそれらを引き起こす宇宙線ミュー オン、<sup>8</sup>B 太陽ニュートリノ由来の中性子だという主張や、季節ごとに地下水位が変化するためラ ドンガスのバックグラウンドの変動だという主張をした。

また、反発する実験グループには XMASS 実験も含まれる。2015 年の発表によると、XMASS 実験は DAMA/LIBRA グループの示唆した季節変動をほぼ排除した。[23]



図 3.6: WIMP-隠し散乱断面積とこれまでの結果の比較。黒実線が XMASS が 2015 年に発表した 季節変動の解析により実際に得られた 90%信頼度での上限。緑(1σ)、黄色(2σ)は今回の統計 量から予想された上限に対する感度 [23]

# 3.10 研究のモチベーションまたは本研究の位置付け

KamLAND-Zen 実験、XMASS 実験など世界最高レベルの感度を誇る検出器も、残存する バックグラウンドに頭を悩ませている。そこで先述した新学術領域「宇宙の歴史をひもとく地下 素粒子原子核研究」の研究グループD班では、すべての実験で共通する「極低放射能環境実現の ための汚染除去技術の向上」を目標に掲げ、汚染除去データベースの作成など個々の実験の叡智 を共有して領域全体で協力し合っている。

0νββ 探索も暗黒物質探索も、さらなる感度の向上のために標的を増量し装置を巨大化する 動きが強まっている。ここで注意したいのは、検出器の大きさに応じてバックグラウンドも増加 するため、バックグラウンド除去技術も高めなければならない点である。暗黒物質探索では、暗 黒物質を発見するために将来的に各グループが融合して、標的を数10 ton レベルまで大型化する 計画がある。例えば将来計画である Xenon N ton 実験では、XMASS 実験の研究者もメンバーと して加わる予定があり、XMASS 実験のバックグラウンド除去で培った知見やノウハウが活かされ ることが期待されている。

このようにニュートリノや暗黒物質など標準理論を超える物理学の探求には、バックグラウン ド除去技術の向上がかかせない。本研究では KamLAND-Zen 実験や XMASS 実験で問題となり、 除去や改善に時間を要す原因となった表面汚染に着目した。表面汚染は測る手段が少なく、測定 器の大きさに制限があるため、例えば装置に用いる素材そのものの汚染は少なくできたとしても、 材料を組み立て、運搬中に付着した表面汚染については図る手段がない。また、Ge 測定器はγ線 を放出しない元素は測ることができない。そこで任意の大きさ、形状に対応し、地下実験のよう な廃坑にも導入のしやすい新しい表面汚染測定器が求められている。本研究では、特殊なフィル ム型シンチレータを用い、表面に付着したα線源を測定し、表面汚染が起きているか判定する方 法の開発を行った。目標感度としては、さきほどのミニバルーンの表面汚染<sup>214</sup>Biを測定できる~ 10 μBq/m<sup>2</sup> を目指すこととする。

## 製品化されている表面汚染測定器 [24]

1. 床モニタ

床などの表面汚染状態を測定するもので、フロアモニタと呼ばれる。横窓型 GM 計数管、断 面積の端窓型 GM 計数管、比例計数管などが用いられ、手押車に装着して測定を容易にしている。 測定対象としては α、β、γ線の測定が可能である。

2. 手足、衣服モニタ

ハンド・フット・クロスモニタと呼び、管理区域の出入り口に設置して、職員の手足、衣服の 汚染を測定する。検出器には ZnS(Ag) シンチレーションカウンタ、比例計数管、GM 計数管など が用いられ、一定の設定値を超えると赤ランプがついたり、警報が鳴ったりする仕組みになって いる。

# 第4章 シンチレーションフィルム

近年の研究により PolyEthylene Naphtalate (PEN) が荷電粒 子の通過により発光し、シンチレータとしての反応をすること が明らかになった。本研究では京都大学と帝人(株)の共同研究 により開発された、主成分が PEN の放射線蛍光プラスチック フィルムを薄型プラスチックシンチレーターとして測定に用い る。これを以下ではシンチレーションフィルムと呼ぶ。



図 4.1: シンチレーションフィ ルム [3]

# 4.1 プラスチックシンチレータ

荷電粒子が通過すると発光する物質をシンチレータ、そのときの光をシンチレーション光とい う。シンチレータ中を荷電粒子が通過すると、シンチレータ中の分子と反応して荷電粒子がイオ ン化されることにより運動エネルギーの一部または全部を分子に与える。そうして分子が励起状 態となった後、再び基底状態に戻るときにそのエネルギーのごく一部が蛍光エネルギーに変換さ れ、シンチレーション光と呼ばれる発光を起こす。シンチレータには無機シンチレータと有機シ ンチレータがあるが、無機シンチレータは比較的発光量が多く、エネルギー分解能が優れており、 無機シンチレータを構成する原子は原子番号が大きいものが多いのでγ線検出に適しているとい う特徴がある。一方、有機シンチレータは発光の減衰時間がおよそ10nsecという時間応答が速い という特徴がある。本研究ではポリスチレンなどのプラスチックに有機シンチレータが溶け込ん だプラスチックシンチレータを用いる。

代表的なプラスチックシンチレータはポリビニルトルエンに2種類の蛍光物質を混ぜたもの などで、主成分が原子番号が小さい水素や炭素であるため、γ線バックグラウンドの影響を受けに くい。

## 4.1.1 時間応答

シンチレーション効率の時間依存性には2つの効果が含まれている。1つ目は蛍光状態になる までにかかる有限な時間で、2つ目は遅発蛍光と燐光に対応する遅いシンチレーションの成分で ある。

蛍光準位への励起も指数関数的であり、光パルスの波形が次式で与えられるとすると

$$I = I_o(e^{-\frac{t}{\tau}} - e^{-\frac{t}{\tau_1}})$$
(4.1)

(T<sub>1</sub>: 蛍光準位への励起を表す時定数、T: その減衰を表す時定数)

全体としての光の関係は

$$\frac{I}{I_o} = f(t)e^{-\frac{t}{\tau}} \tag{4.2}$$

で表される。

#### 4.1.2 荷電粒子の種類による波形の違い

有機シンチレータのシンチレーション光は多くが時間応答の速い発光であるが、実際には長 寿命の蛍光が観測されることが多い。全体の発光は減衰時間が数 nsec の即発蛍光と減衰時間が数 100nsec の遅発蛍光の二種類に分かれており、全体的な光収率曲線は即発蛍光と遅発蛍光の2つの 指数減衰の和で表すことができる。

発光の多くは即発成分が占めるが、遅発成分の割合は励起粒子の種類に依存する。この現象 を利用して異なる粒子が同じエネルギーをシンチレータで損失した場合でも、波形を見ることで それぞれを区別することができる。これをパルス波形弁別(Pulse Shape Discription)という。本 研究でも α線の発光と β線の発光を区別するために波形弁別を行った。その研究に関しては第6 章で述べる。

$$\frac{dL}{dx} = S\frac{dE}{dx} \tag{4.3}$$

 $\frac{dL}{dx}$ : 単位飛程長あたりに放出される蛍光エネルギー

 $\frac{dE}{dx}$ : 荷電粒子の比エネルギー損失

*S* : シンチレーション効率

### クエンチング(消光)

シンチレータでのエネルギー損失は飛程距離に比例するが、エネルギー損失の大きい重イオンが入射すると発光に使われるエネルギーよりも発熱に使われるエネルギーの割合が増加し、発光量がエネルギー損失に比例しなくなる。この現象をクエンチング(消光現象)という。このクエンチングは以下の Birks の式の拡張 4.4 で近似される。

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S\frac{dE}{dx}}{1 + k_B \frac{dE}{dx} + C\frac{dE^2}{dx}}$$
(4.4)

ただし、 $k_B$  はクエンチングパラメータでありシンチレータごとに変わる。分母の第3項 $C \frac{dE^2}{dx}$ は経験則により導かれたものである。



図 4.2: プラスチックシンチレータでの粒子ごとの発光波形の比較。時間 0 で同じ強度になるよう ピーク値で規格化されている。[25]

# 4.2 シンチレーションフィルムの性能

シンチレーションフィルムは、従来のプラスチックシンチレーターと同じレベルの蛍光量、屈 折率、密度を誇るフィルム型シンチレータである。製造に係るコストは10分の1程度になると見 込まれており、その加工のしやすさからも今後多くの放射線検出器に応用されることが期待され ている。また、発光量が最大となる波長が光電子増倍管の量子効率が最大となる波長と一致する ため、コストが高くなる一因である波長変換剤の添加なしに使うことができることも利点である。 従来のプラスチックシンチレータとの違いは酸素が添加されていることである。



図 4.3: シンチレーションフィルムの蛍光波長と蛍光量。従来のプラスチックシンチレータと同程 度の性能である。

名称	シンチレーション	プラスチック	高純度
	フィルム	シンチレータ (BC-48)	PET 樹脂
製造社名	帝人 (株)	Saint-Gobain 社	帝人 (株)
ベース素材	ポリエステル系化合物	$(C_9H_{10})_n$	$(\mathrm{C}_{10}\mathrm{H}_8\mathrm{O}_4)_n$
密度	$1.33~{ m g/cm^3}$	$1.03 \mathrm{g/cm^3}$	$1.33 \mathrm{g/cm^3}$
屈折率	1.65	1.58	1.64
蛍光量	10500 photon/MeV	10000 photon/MeV	2200  photon/MeV
最大蛍光波長	425nm	425  nm	$380 \mathrm{nm}$

表 4.1: 放射線感受性プラスチックの性能

# 4.3 シンチレーションフィルムを用いた先行研究

# 発光性ミニバルーン

先行研究として「KamLAND-Zen 実験における <sup>214</sup>Bi バックグラウンド除去のための発光性バ ルーンフィルムの開発研究」を紹介する。前述のとおり KamLAND-Zen 実験の感度が下がってい る一因としてミニバルーンフィルム上の <sup>214</sup>Bi 由来のバックグラウンドが  $0\nu\beta\beta$  信号とエネルギー 領域が重なってしまうことが挙げられる。<sup>214</sup>Bi を除去する方法として Bi-Po 遅延同時計測法があ る。Bi-Po 遅延同時計測法とは、比較的寿命の短い親核からと娘核からの連続信号をとらえて連 続事象を特定する手法であり、今回の場合は <sup>214</sup>Bi から放射される  $\beta$ 線を先発信号、<sup>214</sup>Po から放 射される  $\alpha$ 線を後発信号としている。しかしミニバルーンはナイロン素材で厚さが 25 $\mu$ m であり、  $\alpha$ 線がミニバルーン膜で遮蔽されて発光しないため除去効率は高くない。そこで KamLAND 検出 器のミニバルーンの素材をシンチレーションフィルムにし、ミニバルーン自体をシンチレータに して α 線の後発信号のシンチレーション光をとらえ、除去効率を高めるということが先行研究の 目的である。

なおミニバルーン素材を選定する過程でシンチレーションフィルムの他に、液体シンチレータ でも用いている発光剤である 2,5 ジフェニルオキサゾール(PPO)を溶かした PPO ナイロンや、 シンチレーションフィルムと同じ会社による PET フィルムと PPO ナイロンが候補に上がった。 しかし、PET は発光時の光子数が少なく [3]、α線による発光を測定した結果有意な発光スペクト ルが見られず、また PPO ナイロンはシンチレーション光の透過率が悪いために候補から外れ、現 在用いている PEN のシンチレーションフィルムを用いることに決定した [26]。



[1]PET

[2]PEN

図 4.4: ミニバルーン素材候補の化学構造式

#### シンチレーションフィルムの発光量 [26]

KamLAND 実験で用いられている液体シンチレータと比較して見た目の発光量(visible energy) が少ない、つまり発光が暗いことがわかっている。visible energy は

(シンチレーションフィルムの<sup>214</sup>Po に対する visible energy) =  $443 \pm 19.1$  keV-visible

となった。なお、この結果はフィルムを重ねて測定したものである。枚数を増やすほどフィル ムの境界面での乱反射や屈折等光学的影響が大きくなるため、厚さを任意に調整できるようにな れば発光量の改善の見込みがある。

# 4.3.1 シンチレーションフィルムの発光波長

日立製のF-2000型分校蛍光光度計を用いてシンチレーションフィルムの発光波長を測定すると、 波長 380nm の励起光に対して発光波長は 425nm にピークを持つことが確かめられている。一般的 な光電子増倍管の感度波長はおよそ 300nm~650nm であり、多くの光電子増倍管(Photomultiplier tube、PMT)の感度波長のピークは 420nm にある。そのためシンチレーションフィルムは PMT で測定するに適切な発光波長をもっていることが確認できている。時定数を表 4.2 に記す。

## 4.3.2 シンチレーションフィルムの発光波形

α線の発光波形を液体シンチレータと比較したところ、シンチレーションフィルムでの発光の 方が遅い成分が多く、発光波形による粒子識別 (PSD) が出来る可能性が示唆されている。[26]



図 4.5: α線の波形。ピーク後の遅発成分の割合が多いため、波形の違いから粒子識別できると期 待される。

表 4.2: シンチレーションフィルムと KamLAND の液体シンチレータ (KamLAND-LS) の時定数 の比較 [27]

	時定数(遅)[nsec]	時定数(速)[nsec]	速い成分/遅い成分
シンチレーションフィルム	$199.2 \pm 18.7$	$27.44{\pm}0.2534$	$7.259 {\pm} 0.685$
KamLAND-LS	8.6	4.0	2.15

# 4.3.3 シンチレーションフィルムの ICP-MS 質量分析

KamLAND-Zen 実験は世界でトップレベルの高感度  $0\nu\beta\beta$  探索実験であるため、放射性物質 が含まれている素材を検出器内部に設置することはできない。ミニバルーンの素材候補としてふ さわしいかどうか U,Th 系列の含有量を計測する ICP-MS 質量分析を NTT アドバンステクノロ ジ株式会社に依頼した。なおミニバルーン素材の含有放射性不純物要求値は <sup>232</sup>Th と <sup>238</sup>U 共に <  $3.0 \times 10^{-12}$  g/g である [12]。

#### ICP-MS の方法

目的 :

湿的化学分析法によってシンチレーションフィルムに含有するトリウム(Th)、ウラン(U)の定 量分析を行う。

分析項目:

- 1. 前処理(フィルムの溶液化)
  - 2. ICP 質量分析 (Th,U の定量分析)

実験:

1. フィルムを超純水(流水)にて 30 分間洗浄した後、クリーンルーム内で乾燥押させた。その あと資料を秤量し、灰化処理を実施した。灰化後、灰分を酸溶解して得られた溶液をフレーム光 度法(K)および ICP-MS(Th,U) で測定した。

2. ICP 装置: Agilent Technologies 社製 7500型 ICP-MS

測定質量数:

Th 232amu U 238amu(プラズマ条件)、RF パワー 1600W 、キャリアガス 0.77L/min メイク アップガス 0.89L/min(データ処理パラメータ) 繰り返し測定 3 回、積算時間ポイント毎 1 秒、質 量数毎 3 秒

#### ICP-MS の結果

ICP-MSの結果を表 4.3 示す。この結果は <sup>238</sup>U は含有放射性不純物要求値を満たしていないが、要求値ほど不純物を減らすことは困難でありあくまでも理想値である。

表 4.3: 氵	レンチレ・	ーションフィルムの Th、U 含	清量 [26]
	名称	シンチレーションフィルム	
	$^{232}$ Th	$<3.7~\mu\mathrm{Bq/m^2}$	
	$^{238}\mathrm{U}$	$2.7 \ \mu \mathrm{Bq/m^2}$	

# 4.4 エタノール耐性

KamLAND 実験では装置の洗浄の際にエタノールを用いて装置や部品に付いている油や不純物を落とすことがある。しかしシンチレーションフィルムは PEN 製であり、一般にポリエチレン (polyethene, PE) 樹脂は酸性物質やアルカリ性物質と接すると加水分解してしまう。例えばシン チレーションフィルムに油性の汚れが付着した時や、表面汚染測定前に測定対象物をエタノール で拭いた時に、シンチレーションフィルムをエタノールで拭いたり付着しても問題があるかを確

かめるため、シンチレーションフィルムのエタノールに対する耐性を評価した。

#### 実験方法

エタノールが 100mL 入った 200mL バイアルを 2本用意し、片方のバイアルにのみ 2cm×2cm にカットしたシンチレーションフィルムを入れ、2本ともクリーンルームで 13ヶ月保管した。

13ヶ月後日立ハイテクノロジーズ社製のダブルビーム型分光光度計 U-3900 を用いてそれぞ れのバイアル内溶液の透過率を測定した。もしエタノールによってシンチレーションフィルムが 腐食していたら、二種類のバイアルの透過率に違いが生じるはずである。



図 4.6: 分光光度計 U-3900(左) とその内部構造

#### 実験結果



図 4.7: エタノール透過率測定の結果 (SF はシンチレーションフィルムの略)

フィルムの入っていないエタノールとフィルム入りのエタノールの透過率の違いから、シン チレーションフィルムを入れると透過率が下がることがわかった。(図 4.7) これはエタノールに フィルムの一部が溶けてしまったためと考えられる。よって基本的にはエタノールに接しないこと とし、もし必要ならば PE に適していると言われるイソプロピルアルコール(IsoPropyl Alcohol, IPA)を用いることとする。なお、先行研究により腐食性のあるプソイドクメン(PC)耐性は確 かめられている。[26]

# 4.5 洗浄

シンチレーションフィルムを実験で使うためには、フィルムそのものがクリーンであることが必 須条件である。素材そのものに含まれている放射性物質の量については確かめられているが、例 えば表面汚染測定に使う時に運搬や周りの汚染によってフィルムに表面汚染が起きてしまうこと も起こりうる。

そこで、本章では開発した企業からフィルムを受け取った状態を初期状態とし、そこから万 が一放射性物質の付着があったとしても表面を洗浄することでフィルムの表面の汚れを減らすこ とができるのかを確かめた。

確かめたいのは以下の2点である。

- 1. 洗うことでシンチレーション光の数は増加するのか
- 2. 指紋・汚れがついたとしても洗って何度も繰り返すことは可能か

#### 洗浄方法

具体的な洗浄方法としては KamLAND 検出器に関わる装置の洗浄の実績に習い、超純水とマ ジックリンを使って洗うことにした。[28] ゴム手袋を嵌めてスポンジで表面をそっと撫でるように 洗い、クリーンルーム内に吊り下げて乾かした。

#### 洗浄の結果

東北大学西澤潤一記念研究センターの G-10 デジタル顕微鏡(キーエンス社製のクノーテクノ クラフト)を用いて洗浄して乾かした後のシンチレーションフィルムの表面を撮影した。その写 真を図 4.8 に乗せる。

洗浄後は無数の傷があり、手袋やスポンジの摩擦により表面が傷ついてしまうことが分かっ た。以降シンチレーションフィルムの表面は極力触らないこととした。

## 洗浄前後の発光量の変化

洗浄後のシンチレーションフィルムを用いて<sup>241</sup>Amの発光測定を行った。セットアップは図 4.9 のようにした。その時のイベント数の比と発光のエネルギー(charge)のピークを以下の表にまとめた。



図 4.9: 測定のセットアップ。装置の詳細は § 5.2 で述べる。



洗浄前

洗浄1回



洗浄5回



洗浄5回

図 4.8: フィルムの洗った回数別の表面の様子。洗浄回数が増えるにつれて傷が多くなっているの がわかる。

結果はエネルギーピークはほぼ変わらないままイベント数が減った。これは洗浄の過程で表 面に無数の傷がつき、光の透過率が下がったためと考えられる。

## 水を含んだフィルムの発光

今回の実験において、洗浄をした後乾かす時間によって発光のエネルギースペクトルが大き く変わることを発見した。そのことを確かめるために

[1] 洗浄前のフィルム [2] 洗浄後水気を取っただけのフィルムでそれぞれ測定を行った。そのエネルギースペクトルを図に示す。

洗浄回数	0回	1回	5 回
イベント数の比	1	0.83	0.84

表 4.4: 洗った回数別のイベント数の比(0回のときを1とした)





図 4.10: 黒:洗浄前 青:洗浄後水気を取った後すぐの<sup>241</sup>Amのエネルギースペクトル。測定全 般に関しては§5で詳述するが、ここでは1500 chから始まるピークが洗浄前後で大きく変化する ことが確認出来る。

図4.5から、乾かす時間が短かったときにエネルギースペクトルが変化したのはシンチレーショ ンフィルム内に水分が入り込み、シンチレーション光を拡散させるなどしたためだと考えられる。

以上より、シンチレーションフィルムは触れてしまうと表面にミクロの傷がつく。また濡らし てしまうと完全に乾くまで時間がかかるため、洗浄という行為自体が逆効果になることも有り得 ると分かった。よってシンチレーションフィルムは企業から頂いた新品をそのまま用い、汚れた ら処分することが望ましいという結論に達した。

# 第5章 表面汚染測定

# 5.1 表面污染検出原理

本研究では表面汚染として Th 系列や U 系列の元素を想定しており、表面汚染からの  $\alpha$  線を 捉えることを目的としている。 $\beta$  線や  $\gamma$  線は  $\alpha$  線に比べるとエネルギー損失が小さいため、信号 を捉えたとしてもそれが表面汚染なのか、測定対象物の素材の含有物なのか、または測定対象物 とは関係無いものなのかを区別することができない。その点  $\alpha$  線は素材内部に混入していたとし ても遮蔽されてしまうため表面に現れることはなく、100  $\mu$ m の薄さでもエネルギー損失するため に、表面汚染からの  $\alpha$  線のみを捉えることができる。

測定方法を図 5.1 に示す。測定対象物(検出器、照明など)の表面にシンチレーションフィル ムを当て、その発光を光電子増倍管で観測する。α線を放射する物質が表面に付着していればシ ンチレーションフィルムは発光する。そしてシンチレーションフィルムの対象物と反対側を透明 なフィルムで覆うことによって、外部からのα線を遮蔽することが可能となる。



図 5.1: 表面汚染検出原理。透明フィルムでラミネートすることで外部由来の *α* 線を遮蔽し、表面 汚染からの *α* 線のみに感度を持たせることができる。

# 5.2 データ取得のセットアップ

# 5.2.1 回路

測定は主に図 5.2 のセットアップで行った。遮光のために暗箱(§ 5.2.4)を用意し、内部に光電 子増倍管(PhotoMultiplier Tube,PMT)を置いた。実験の意図によって線源・フィルムの種類や配 置の順番を変えて測定した。PMT の1端には高電圧電源を、一方の信号端子には直接 FlashADC をつなぎ、高電圧電源の制御やデータ取得はコンピュータで行った。なお測定は東北大学ニュー トリノ科学研究センター 1F のクリーンルームで行った。(§ 5.2.4)



図 5.2: 回路。暗箱はクリーンルーム

# 5.2.2 光電子增倍管 (以下、PMT)

第3章地下素粒子原子核実験でも述べたが、PMTとは入射した光をダイノード部で増幅させ、電気信号として出力する光センサーである。

本研究で用いた PMT は浜松ホトニクス社製の 1.5 inch の R9420(型番)である。性能を表 5.1 に示す。



種類	ヘッドオン型		
製造者名	浜松ホトニクス (株)		
受光面サイズ	arphi 34mm		
最短感度波長	300  nm		
最長感度波長	650  nm		
感度波長ピーク	420  nm		
光電面 種類	バイアルカリ		
入射窓 材質	硼硅酸ガラス		
上昇時間	1.6  ns		

表 5.1: PMT R9420 の性能

# 5.2.3 CAEN 製の Flash ADC

Analog to Digital Converter (ADC) とはアナログ入力信号をデジタル信号に変換するモジュールである。その中でも Flash analog-to-digital converter (以下、Flash ADC) は量子化レベルの数だけ並列に配置されたコンパレータ(比較器)を同時に動作させており、高速処理が可能になっている。

本研究では CAEN 社製の DT5751 型番の Flash ADC を用いて PMT の発光波形を記録して いる。これはダイナミックレンンジは 1V、サンプリングレートは 1 GHz、ADC 出力は 10 bit、 データ点は 1 nsec ごとに取ることができる。また、1 モジュールで 2 ch のデータを同時にサンプ リングすることが可能である。

FADCはADCのように電荷(エネルギーに対応する)を記録するのではなく、全ての信号の波形を記録できる。その結果第6章で説明する波形弁別法が実現した。



図 5.4: CAEN 社製 Flash ACD (2-4 Channel 10 bit 2/1 GS/s Digitizer)

図 5.5 に取得した波形データを示す。相対的に波高が 0 となる縦軸(ADC count)の値をペデ スタルと呼ぶ。ペデスタルはおよそ 939 ch である。



図 5.5: Flash ADC で取得した波形の様子。

Flash ACD の縦軸 ADC カウントが1 ch あたり何 mV に対応するのかを調べるために図 5.6 の 回路で NIM モジュールとオシロスコープ、FlachADC を用いて測定を行った。測定原理は、クロッ クジェネレータから出るパルス波をアテニュエータ(減衰器)で任意に減衰させ、オシロスコー プでパルス波高が何 mV になっているかを測定してから同じ信号を Flash ADC に接続し、Flash ADC での波高 [ch] から1 ch が何 mV に対応するかを調べるというものである。



図 5.6: ADC カウントと mV の対応を調べるための回路。クロックジェネレータから出るパルス をアテニュエータで減衰させ、オシロスコープで波高 [mV] を、Flash ADC で波高 [ch] を図った。

測定により1 ch がほぼ1 mV に対応していることが明らかになった。

#### 5.2.4 実験環境

測定は東北大学ニュートリノ科学研究センター 1F のクリーンルームで行った。クリーンルームの見取り図 5.7 を示す。



図 5.7: クリーンルームを上から見た図。HEPA フィルターが2つ設置されており、クリーンルームの大きさに対し十分な空気の循環が行なわれている。

まず1でクリーンスーツに着替えるが、わずかな粒子も空気を汚染してしまうため、整髪剤、化 粧、日焼け止め、乳液などは付けない状態で入る。手袋、ヘアキャップ、マスクをしたらクリーン スーツに着替える。次に2のエアーシャワーを浴びる。このエアーシャワー装置は日本エアーテッ ク社製の EAS-8016AMR(型式)で、クリーンルームの清浄度を保つために人や物の表面に付着 している塵や埃を除去する機能がある。ジェットエアーは HEPA フィルターという埃を除去する フィルターを通って清浄化されたものである。吹出風速は約 25 m/sec で 30 秒間浴び続ける。集塵 効率は 0.3  $\mu$ m 粒子(大気塵)にて 99.99%以上である。3 はクリーンルームであるが、天井部分に 小型多目的 HEPA フィルターが2 台取り付けられている。同じく日本エアーテック社製の MAC-2 A-30 を使用しており、処理風量は約 3.0~3.5 m<sup>3</sup>/min、吹出風速は平均 0.38~0.44 m/sec である。 クリーンルームは縦 3 m、横 2 m、高さ 2.2 m である。

このクリーンルームの環境評価を行った。

## 測定原理

環境評価にはリオン株式会社製のハンドヘルドパーティクルカウンタ KC-52 を用いた。パー ティクルカウンタが空気中の粒子を装置本体に吸い込み、その粒子に半導体レーザ(波長 780 nm、 定格出力 35 mW)を当て、光の散乱を捉えることによって粒子を検出する。散乱光強度は入射光 強度に比例し、散乱方向、粒径、粒子の屈折率と空気などの媒質の屈折率の比、及び媒質中の光 の波長の関数として求められる。粒径が光の波長より十分小さい範囲において、散乱光強度は粒 径の 6 乗に比例し、光の波長の 4 乗に逆比例する。



図 5.8: リオン社製ハンドヘルドパーティクルカウンタ KC-52

清浄度はアメリカ連邦規格 Fed.Std.209D(以下、Fed)で評価する。Fed とは 1ft<sup>3</sup> (28.3L)に 含まれる 0.5 μm 以上の微粒子数 個/ft<sup>3</sup> のことである。

Fed.Std.209D	$0.1~\mu{ m m}$	$0.2~\mu{ m m}$	$0.3~\mu{ m m}$	$0.5~\mu{ m m}$	$5 \ \mu { m m}$
クラス1	35	8	3	1	-
クラス 10	350	75	30	10	-
クラス 100	$3,\!500$	750	300	100	-
クラス 1,000	$35,\!000$	7,500	$3,\!000$	$1,\!000$	7
クラス 10,000	-	-	-	10,000	70
クラス 100,000	-	-	-	100,000	700

表 5.2: 一般環境下のクリーン度目安(個数)

なお、このパーティクルカウンタの定格流量が 2.83 L/min であるため、ハンドヘルドパー ティクルカウンタを置いて 10 分間測定した。

#### 測定結果

測定 (/28.3L)	$0.3~\mu{ m m}$	$0.5~\mu{ m m}$	$1.0 \ \mu \mathrm{m}$	$2.0 \ \mu \mathrm{m}$	$5.0 \ \mu m$
クリーンルーム床から 32.2 cm(1 回目)	1	0	0	0	0
クリーンルーム床から 32.2 cm (2 回目)	3	1	1	1	1
クリーンルーム暗箱底から 32.2 cm	20	7	2	1	0
居室床から 106.2 cm	302773.0	34573.0	4813.0	1365.0	40.0

表 5.3: 観測された粒子の粒径ごとの個数

測定結果を表に記す。これはクラスに換算すると床上はクラス1、暗箱内はクラス7というこ とである。ニュートリノ科学研究センター2階の居室はクラス30000以上であることから、本研 究を行ったクリーンルームも格段に清浄度が高いことが明らかである。

#### 暗箱

PMT は極めて微弱な光を観測できるため、わずかでも光が漏れてしまうと測定に影響を与え る。電圧を印加しているときに室内灯ほどの光に当たると故障してしまう上、印加していないと きでも強い光によって暗電流の増加や感度劣化を招く恐れがある。そのために測定に適切な大き さの暗箱を作成した。暗箱そのものはプラスチックダンボールで組み立て、中に黒色画用紙を貼っ た。外側を遮光布で3重に覆うことで光漏れのない暗箱が完成した。今回の実験では PMT が1つ で測定を行ったが、将来 Bi-Po 遅延同時計測を行うときにはα線と同時にβ線を測定する必要が ある。そのときに NaI (Tl) などのβ線に感度を持つシンチレータ及びそれに付随させる PMT を 用いることを想定して暗箱は大きめの縦 380mm、横 460mm、高さ 600mm のサイズで作成した。







図 5.9: プラスチック段ボール 図 5.10: 内部は黒紙で覆って 図 5.11: 遮光布を 3 重にして で作成した暗箱 いる 覆い、光漏れを無くしている

# 5.3 Geant4 シミュレーションを用いた各フィルムの厚さ決定

Geant4とは粒子が物質中を通過する際に起こす相互作用の過程を正しくシミュレーションするソフトウェアパッケージのことである [29]。ここでいう"粒子"とは、素粒子、原子核、イオンなどの放射線や光学光子などを指す。形式はシュミレーションソフトではなく、シミュレーションやアプリケーションをユーザ自らが作成する際に必要な C++クラスをまとめたパッケージである。自由度が高く柔軟性をもつため、基礎物理学実験分野、放射線医療・医学分野、放射線遮蔽分野、宇宙分野、工業分野など世界的に幅広く使われている。

本研究ではシンチレーションフィルムと透明フィルムの厚さの決定のために、Geant4を用いてシンチレーションフィルム内での荷電粒子のエネルギー損失をシミュレートした。

## 5.3.1 各フィルムでの粒子のエネルギー損失のシミュレーション

表面汚染の測定原理の項で述べたように、シンチレーションフィルムも PET フィルムもどち らも測定対象である α線が、フィルムを通過する際にエネルギーを全て損失する必要がある。そ こで考えられる α線のうちエネルギーの最も高い<sup>212</sup>Poの8.78 MeV の α線でシミュレーション を行った。なお、片側感度を持たせるための透明フィルムの候補はオーバーヘッドプロジェクタ シート (OHP シート) などのポリエチレンテレフタラート (PET) 製であったため、透明フィル ムは PET フィルムと設定した。

#### ジオメトリ

空間にそれぞれ円に切り取ったフィルムを置き、その上のちょうど中心部にα線源を置いた。 そしてフィルム上でα粒子が何 MeV エネルギーを損失したかを確かめた。ここでα線は 8.8 MeV である。PET フィルムは市販のラミネートシートが 100µm だったためその厚さでのエネルギー 損失を調べ、シンチレーションフィルムは 数種類の厚みのサンプルを頂いていたため、最も薄い 25µm から 25µm ずつ厚くし、8.8 MeV を遮蔽できるフィルムの厚さを求めた。



図 5.12: シミュレーションのジオメトリ

# 結果

フィルムに入射した粒子がフィルム内で損失するエネルギーのスペクトルを図 5.13 と図 5.14 に示す。透明 PET フィルムは 100μm で十分外側からの α 線を遮蔽できることが分かった。シン チレーションフィルムは 25µm と 50µm では α 線がエネルギーを落とし切らないため不適であり、 75µm 以上の厚さがあれば良いということが分かった。現在シンチレーションフィルムを開発し た企業からサンプルを提供していただいている関係で、75µm 以上のフィルムサンプルの厚さは 125µm であった。よって 125µm のシンチレーションフィルムを用いることとした。



図 5.13: 1mm 厚 PET フィルムのエネルギー損失 図 5.14: シンチレーションフィルムの厚さごとの エネルギー損失

# 5.4 ラミネート方法

ここでは先述したラミネート方法について述べる。

#### ラミネート方法1:市販のラミネート加工用シート

研究の初期段階では透明フィルムとしてオーバーヘッドプロジェクタシート (OHP シート)を 用いていたが、フィルムとの密着性の低さによりシンチレーションフィルムと OHP シートの間に 空気層が存在してしまい、全反射が起こりやすくなって光の透過率が低下することや、もともと の OHP シートの透明度の低さから代替案を探すことが必要となった。そこで市販のラミネート加 工用シートとラミネータ(アコ・ブランズ・ジャパン社)を用いたラミネート加工を行った。(な お、ここでのラミネート加工とは日本でなじみの深い、紙などを保護のためにプラスチックシー トで挟むパウチ加工を指す。)ラミネート加工用シートの本来の使い方のようにシンチレーション フィルムを挟んでしまうと、シンチレーションフィルムの両側がシートで加工されてしまうため、 家庭用のクッキングシートを利用してフィルムの片側のみをラミネートする方法を考案した。図 5.15 のようにシンチレーションフィルムの片側にラミネート加工用フィルム、反対側にクッキン グシートが触れた状態でラミネーターに通すことで片側のみがラミネートされる。また、測定対 象物の近くまではラミネート直後の状態のまま運び、測定する直前に切ることでシンチレーショ ンフィルムの表面をクリーンなまま保つことができる。

ラミネート方法の手順を以下と図 5.15 に示す。

- シンチレーションフィルムを PMT に合わせたサイズ(今回は 1.5 inch) にカットし、それ よりも大きくなるようにクッキングシートをカットする。2枚を重ねて市販のラミネート加 エシートに挟む。
- 2. 電源を入れて温めたラミネーター(今回は100度、製品により異なる)に通す。この時もし 空気が入ってしまった場合は使用することができない。
- 3. ハサミで切れば完成する。表面のクリーンさを保つためにはこのままの状態で運び、測定す る直前にハサミでカットすることが望ましい。



① ラミネートシートにシンチレーションフィルムとクッキングシートを挟む

図 5.15: 市販のラミネート加工シートを用いたラミネートの手順

# ラミネート方法2:KamLAND-Zen実験のミニバルーンフィルム

先述した KamLAND-Zen 実験ではナイロン 6 製の 25μm のフィルムを使ってミニバルーンを 作成している。ここではラミネート加工用フィルムの代わりにこのナイロンフィルムを使ってラ ミネートする手法を考案する。このフィルムは KamLAND グループによって以下の条件を満たす ように特注されたフィルムである。[28]

- 強度が十分であること
- 光透過率が95%以上
- キセノンガスが透過しないこと
- 放射能含有率がウラン・トリウムで 10<sup>-12</sup> g/g 程度以下であること
- カリウム 40 の含有量が 10<sup>-11</sup> g/g (通常のカリウムで約 10<sup>-7</sup> g/g) 以下
- 25 μm の厚さ(Bi-Po 遅延同時計測のため)
- 放射性不純物を出来るだけ混入しないように,接着剤を使用せず溶着で製作可能であること

条件にあるように U,Th 含有量を少なくするために、フィルムの製造元に依頼してフィラーを含 まずコロナ加工をせずに作成してもらっている。このフィラーは静電気を防ぐという役割を担う ため、ミニバルーンフィルムは通常のナイロンフィルムよりも静電気が発生しやすくなっている。 静電気が発生しやすいということは、空気中の埃等の汚染物質が付着しやすいという難点がある が、一方でシンチレーションフィルムと密着しやすいという利点もある。

その静電気の発生しやすさを利用し、ラミネータを使わずに静電気の力のみでシンチレーショ ンフィルムをラミネートすることにした。全ての作業をクリーンルームで行うため埃が付きやすく ても問題はなく、むしろここまで U,Th 含有量の少ない透明フィルムは市販では手に入らない。25 μm ということは 75 μm にするために 3 枚重ねる必要があり、これは空気層が入り込みやすいと いう短所がある。一方で外側から来る 8.8 MeV のα線が遮蔽する最薄の厚さであり、シンチレー ションフィルムでの発光の減衰が 100 μm よりも少なくなるという長所もある。

ラミネートの方法を以下と図 5.16 に示す。

- 1. シンチレーションフィルム、ミニバルーンフィルムを PMT に合わせたサイズ (今回は 1.5 inch) にカットする。
- ゴム手袋でミニバルーンフィルムにそっと触れ、静電気を発生させてシンチレーションフィ ルムに接着させる。
- 3. ハサミで切れば完成する。



図 5.16: ナイロン製ミニバルーンフィルムを用いたラミネートの手順

# それぞれのラミネート方法での発光

それぞれのラミネート方法を比較するために、図 5.2 のように回路を組んで  $\alpha$  線源である <sup>241</sup>Am を用いて発光測定を行った。その結果を以下に示す。

なお 図 5.17 は先ほどのラミネート方法 1 (市販のラミネート加工用シート) とラミネート方法 2 (KamLAND-Zen 実験のミニバルーンフィルム)の<sup>241</sup>Am のエネルギースペクトルを比較したものである。



図 5.17: 黒:ラミネートシート、赤:ミニバルーンフィルム でラミネートしたときの<sup>241</sup>Am の発 光。2つ目のピークの位置がミニバルーンフィルムの方がやや下がっている。

どちらも2つのピークがほぼ同じ位置に見えているが、ラミネート方法2ではエネルギーの ピークがやや下がっている。この理由としては、ラミネート方法2の場合はミニバルーンフィル ム3枚を手で接着させているため、空気層は完全になくなっておらず、空気により光が減衰した ものだと考えられる。

### 5.4.1 それぞれのフィルムに含まれる放射性不純物

ラミネート方法1により透過率の高く密着した片側感度のシンチレーションフィルムが実現 した。しかし、本研究は極低放射能環境を実現するための測定法の開発であるため、測定器であ るシンチレーションフィルムとラミネート加工用シートそのもの、ラミネート加工による汚染は 避けなくてはならない。そこでそれぞれの素材に含まれる U,Th 系列を ICP-MS 法による質量分 析で調べた。

本測定は第4章の先行研究でシンチレーションフィルムのICP-MSを測定した時と同様、NTT アドバンステクノロジ株式会社に依頼した。

## ICP-MS の結果

ラミネーターに通すことによってフィルムは汚染されないか、クッキングシートの影響はないかを ICP-MS で調べた。結果を表 5.4 にしめす。比較のために前章で掲載したシンチレーションフィルムの ICP-MS 質量分析の結果も載せる。

名称	ラミネート前	ラミネート後	ミニバルーン	シンチレーション
	ラミネートシート	ラミネートシート	フィルム	フィルム
$^{232}$ Th	$1.5 \times 10^4 \mu \mathrm{Bq/m^2}$	$1.3 \times 10^4 \mu \mathrm{Bq/m^2}$	$4.4\mu Bq/m^2$	$3.7\mu Bq/m^2$
$^{238}\mathrm{U}$	$1.1 \times 10^5 \mu Bq/m^2$	$8.2\times 10^4 \mu \mathrm{Bq}/\mathrm{m}^2$	$1.5\times 10^{-1}\mu\mathrm{Bq/m^2}$	$2.7\mu Bq/m^2$

表 5.4: 放射線感受性プラスチックの性能

ここでまず注目したいのは、ラミネート前後でラミネートシートの U、Th 含有量が増加してい ないという点である。ここから、ラミネータを用いたことによる汚染などの影響は無視できると 分かった。一方でラミネートシートはミニバルーンフィルムやシンチレーションフィルムと比べ て~10<sup>4</sup> 倍含有量が多いということも明らかになった。感度として~Bq/m<sup>2</sup> 程度ならばラミネー トシートでも十分に測れるということではあるが、今後 10 μBq/m<sup>2</sup> という目標値を達成するには 透明フィルムとしてラミネートシート以外のものを使わなければならないということである。そ こで、高感度化の実現に向けて透明フィルムとして KamLAND-Zen 実験のミニバルーンフィルム を使うことを検討している。ミニバルーンフィルムは 0νββ 探索のために、極力不純物を減らし て特別に作成しているため、表5.4のようにクリーン度が高くなっている [28]。ただし市販のラミ ネートシートとは違いラミネータで密着させることにはまだ成功していない。ゆえに本誌では以 後ラミネート方法1で行った研究結果を記載するが、ラミネート方法2でも同じスペクトルが得 られていることから、密着させる方法が確立できればミニバルーンフィルムでも以下の研究と同 等またはそれ以上の結果が得られることが予想される。それ以上、と期待しているのは市販のラ ミネートシートが 100 μm なのに対し、ミニバルーンフィルムは重ねることで 8.8 MeV の α 線を カットする最薄の 75  $\mu$ m にでき、 $\alpha$ 線の信号と誤判定されやすい  $\beta$ 線の発光を減らすことができ るためである。

# 5.5 *α*線の発光波形の測定

 $\alpha$ 線源として<sup>241</sup>Amを用いた。<sup>241</sup>Amからは 5.4 MeV の  $\alpha$ 線と 0.0595 MeV (約 60keV) の  $\gamma$ 線が放出される人工的に作られる放射能である。<sup>241</sup>Am の崩壊図は図 5.18 に示す。また、測定 は高圧電源(HV) 1400 V で閾値(Threshold)は 850 ch(立ち下がり波形のため、mV に換算す ると約 89 mV)で 10 分間測定したものである。今後加筆していない限り測定は全て同じ条件で 行った。



図 5.18: <sup>241</sup>Amの崩壊図

## 測定原理

先述したシミューレションの結果より、8.8 MeV よりも弱い<sup>241</sup>Am のα線はシンチレーショ ンフィルムで全てのエネルギーを損失するはずである。よって発光エネルギーのピークが 5.4 MeV のα線に対応する。ただし、一般にα線は消光(クエンチング)現象を起こすため、シンチレー タの材質によるが一般に波高が 10~20 分の 1 になると言われている。クエンチングについては後 述する。(§ 5.5.2)



図 5.19: Flash ADC で取得した波形データの一例。左図が横軸時間 [ns] で縦軸が波高 [ch] のその ままの波形で、中央図がペデスタル値のヒストグラム、右図が左図をペデスタル値をゼロとして 反転させた波形

#### エネルギースペクトルの求め方

Flach ADC では PMT で捉えたシンチレーションフィルムの発光は図 5.19 のように検出される。 このとき、波形を取得する際波高の最も低い部分は常に 0 より少し大きく、上げ底状態で測定さ れるため波形データの波高がそのまま信号の波高とはならず、底の部分を差し引かければならな い。その底の部分をペデスタルという。ペデスタルを求めるために Flash ADC で取得するサンプ リングの 1 µs 間のうち、イベントの波形と重ならない 400 ns~1000 ns で波高が 930 ch よりも大 きくなった時の波高の値をヒストグラムに表し、ガウス関数でフィットした値をペデスタルとして いる。ペデスタルのヒストグラムは図 5.19 の中央の図に当たる。

データ波形より、90 ns~350 ns を積分範囲として波高を足し合わせて面積を計算した。その 面積が電荷量、すなわちエネルギーに対応している。

#### 半値幅の求め方

波高ピークの値を求め、その値の半分の高さになるピークより前の立ち上がり時間(横軸)を  $T_-$ 、ピークより後の立ち下がり時間を $T_+$ とし、 $T_+ - T_-$ の値をその波形の半値幅と定義した。

#### 測定結果

得られたエネルギースペクトルと半値幅スペクトルを図 5.20 に示す。



図 5.20: <sup>241</sup>Am のエネルギースペクトルと半値幅スペクトル

#### 5.5.1 *α*線測定による片側感度の確認

シンチレーションフィルムをラミネート加工することによって片側感度のシンチレーション フィルム(以下ラミネートフィルム)になったのかどうかを確認する必要がある。

#### 片側感度の原理

線源の真下にシンチレーションフィルムを置くと α線がシンチレーションフィルム内で発光 し、その下に透明フィルムを置くとその光が透過して PMT に届き、発光を確認することができ る。しかし図 5.21 のセットアップ B のように線源とシンチレーションフィルムの間に透明フィル ムが置かれると、線源からの α線が透明フィルムで遮蔽されるためシンチレーションフィルムは 発光しない。この違いはエネルギースペクトルに出るはずであり、このことを利用して α線の発 光を特定することができる。

#### 測定

データ取得のセットアップ回路は図 4.9 と同様で、測定も東北大学ニュートリノ科学研究セン ターのクリーンルーム内の暗箱で行った。ただしシンチレーションフィルムと透明フィルム(ここ ではラミネート加工用シート)の順番は図 5.21 のように 2 種類用意した。原理が正しければ、セッ トアップ A では α線の発光が見られるがセットアップ B では見られないことになるはずである。



図 5.21: 左:セットアップA 右:セットアップB

## 測定結果

図 5.5.1 はそれぞれのセットアップでの測定のエネルギースペクトルである。



図 5.22: 黒:セットアップA 緑:セットアップB

2nd ピークはセットアップ A のみに現れているため、これが $\alpha$ 線の信号であると分かった。 またどちらのセットアップにも見られる 1st ピークについてはいくつかの検証を行ったため次節 § 5.5.2 で詳述する。そして、これからは図 5.21 のセットアップ A のことを基本セットアップと呼 ぶことにする。

# 5.5.2 *α*線の1st ピークの検証

セットアップBの測定結果から1st ピークの波形データを取り出し、重ね書きして平均波形を 作った。(作成手順については次章で述べる。)



図 5.23: セットアップ A,B で共通して現れた低エネルギー領域 (0~1500 ch) のピーク

この1st ピークの正体を明らかにするために、新たに3つのセットアップを用意した。

- 1. PMT のみ
- 2. シンチレーションフィルムのみ
- 3. <sup>241</sup>Amのみ
- 4.<sup>241</sup>Am、シンチレーションフィルム、銅板

1. 線源のないときの発光 (PMT のみ)

線源をおかずに PMT のみで測定した。結果のエネルギース ペクトルを図 5.5.2 に示す。200~300 ch という非常に低エネル ギーな領域に暗電流のわずかなピークが見られた。



図 5.24: シンチレーションフ ィルムのみの発光測定



図 5.25: PMT そのもののノイズの測定。右は 0~600 ch を拡大したもの。

# 2. 線源のないときの発光 (シンチレーションフィルム)

線源をおかずシンチレーションフィルムのみで測定した時に 起こりうる発光としては、宇宙線ミューオン・環境γ線・PMT そのものの汚染などによるものがある。その発光の頻度、エネ ルギー、波形を得るためにこの測定を行った。結果のエネルギー スペクトルを図 5.27 に、波形を図 5.28 に示す。



図 5.26: シンチレーションフ ィルムのみの発光測定



図 5.27: 線源を置かずにシンチレーションフィルムのみで測定したときのエネルギースペクトル。 高エネルギーのスペクトルは宇宙線や環境放射線と考えられる。


図 5.28: 線源を置かずにシンチレーションフィルムのみで測定したときの波形。低エネルギー (380.7 ch)の広がりをもたない鋭いピーク(左)と高エネルギー(3611.5 ch)のピーク(右)

低エネルギー領域の波形は幅がなく鋭いピークで、ノイズなどによるものと見られる。高エネル ギーの波形は広がりを持っていることから、外部由来の放射線による発光の可能性がある。10分 間(600±2 秒)測定し、イベント数は1124 個(約1.87 Hz)だった。そのうち、0~1000 ch のイ ベントは743 個あった。(1.28Hz)、エネルギーが高いところは1000 ch 以上は 381 個(0.64 Hz) であり、宇宙線や環境放射線による発光が考えられる。



続いて、PMT の上に<sup>241</sup>Am を置いただけの状態でも測定を 行った。セットアップを図 5.29 に、結果を図 5.30 に記す。

図 5.29: シンチレーショ ンフィルムのみの発光測 定



図 5.30: α線のみを置いた測定。HV は 1400 V、Threshold は 850 のまま

ここで、<sup>241</sup>Am のみの場合と、<sup>241</sup>Am とシンチレーションフィルムの場合のエネルギースペク トルを比較する。(図 5.32) 1st ピークはシンチレーションフィルムが無くても現れ、更にシンチ レーションフィルムのみの場合のエネルギースペクトルの方が低エネルギー側に寄っていること から、<sup>241</sup>Am 由来のノイズが見えていると考えた。考えられる理由としては電場のふらつきによ る電気ノイズまたは<sup>241</sup>Am から放射される  $\gamma$ 線が挙げられる。Am 線源は Am は金属に塗布され ており、1000 V 以上の高電圧がかかる光電面の近くに金属を置くことで電場が不安定になること もある。また、<sup>241</sup>Am は 59.5keV の  $\gamma$ 線を放射するため、光電面で反応をしノイズが検出される 可能性を考えた。それを確かめるため、次の項目では  $\gamma$ 線を遮蔽するために 5mm 厚の銅板を用い て測定を行った。



図 5.31: 左:<sup>241</sup>Am のシンチレーション光の波形。遅発成分が多いため後半に広がりを持つ。右: <sup>241</sup>Am のみの測定でのイベントの波形。広がりのない信号となっている。



図 5.32: <sup>241</sup>Am のシンチレーションフィルムでの発光と、<sup>241</sup>Am のみの場合で検出される信号の エネルギースペクトルを比較した。

## 4.<sup>241</sup>Am、銅板、シンチレーションフィルムでの測定

先述の通り図 5.5.1 の 1st ピークは PMT のみまたはシンチレー ションフィルムと PMT では観測されなかった。ゆえに <sup>241</sup>Am がなんらかの効果をもたらしているとわかり、その原因を  $\gamma$ 線 ( $\beta$ 線) だと推測した。それを確かめるために、<sup>241</sup>Am 線源を Ge 半導体検出器に置いて線源そのものまたは容器から来る  $\gamma$ 線 ( $\beta$ 線)を測定した。更に、 $\gamma$ 線 ( $\beta$ )線だった場合は 5 mm 厚の銅 板で遮蔽でき、<sup>241</sup>Am とシンチレーションフィルムの間に銅板 を置いたセットアップ (図 5.33)では観測されないはずである。 これを確かめた。以下で出てくるシンチレーションフィルムと はラミネートされたシンチレーションフィルムのことで、断ら ない限り基本セットアップ (セットアップA)の向きで使用し ている。



図 5.33: <sup>241</sup>Am、5 mm 厚銅板、シンチレーショ ンフィルムというセット アップ

エネルギースペクトルを比較すると、 $\alpha$ 線のみを置いたときに現れたピークは銅板を置くことで 消えることが判明した。(図 5.34) さらに Ge 半導体検出器では 0.5 MeV 以下の低エネルギーの $\gamma$ 線が観測された。データ取得時間 (live time) 1779.43 sec でピークのカウント数は 10<sup>3</sup> 個と非常 に高いレートである。これは <sup>241</sup>Am から放出される 約 0.06 MeV (60 keV) の $\gamma$ 線だとわかる。 0.1 MeV 付近のピークはちょうどエネルギーが倍になっており、偶発同時事象で 2 つの $\gamma$ 線が観 測されたものだと見なせる。



図 5.34: 黒:シンチレーションフィルムのみ、赤:<sup>241</sup>Amのみ、緑:間に銅板を挟んだセットアップ。赤のみピークが広がっている。



図 5.35: 半導体検出器で検出されたエネルギースペクトル。右は低エネルギー領域を拡大したものである。

## 波高の閾値 (Threshold) の変更

エネルギースペクトルでの低エネルギー領域(0 ch~ 1000 ch)はピークのように見えるが、 実際は各ピークの左側は Threshold のカットによるもので、本来は連続スペクトルになることが予 想される。実際に基本セットアップで Threshold を下げていった。現在 Threshold は 850 ch (89 mV)で行っているが、それを 9 mV, 39 mV, 89 mV, 149 mV, 189 mV と変えた設定でも測定し た。それぞれで得られたエネルギースペクトルを比較する。(図 5.36)



図 5.36: Threshold 黒:9 mV, 赤:39 mV, 緑:89 mV, 青:149 mV, ピンク:189 mV。拡大図。 1st ピークは Threshold が小さくなるにつれて左へ移行している。

#### 半値幅カットによる分離

以上より 1st ピークは電気または PMT 及び  $\gamma$ 線( $\beta$ 線)によるノイズであると分かった。こ れらは広がりのない鋭いピークであるがゆえに半値幅カットとエネルギーカットにより落とすこ とができる。エネルギーと半値幅の 2 次元ヒストグラムは図 5.37 に示す。先ほどの<sup>241</sup>Am の基本 セットアップのエネルギースペクトルに、ノイズと思われる半値幅が 3 以下の波をカットした後 のエネルギースペクトルを重ねると、半値幅カットにより 1st ピークが消えることが確認できた。 同様にエネルギー 1500 ch 以下の波をカットしても同じ効果があった。(図 5.38)



図 5.37:<sup>241</sup>Am のエネルギーと半値幅の 2 次元ヒストグラム。ただし信号数を増やすために 60 分 間測定した。



図 5.38: 黒が元の<sup>241</sup>Amの基本セットアップのエネルギースペクトル。赤が半値幅3以下のイベントを取り除いた後のエネルギースペクトル。低エネルギー領域のピークは見られなくなった。

# フィッティング

次に、α線ピークのガウス関数フィッティングをおこなった。ただし、<sup>241</sup>Am 線源が軽いた めにシンチレーションフィルムと PMT の間に空気層ができており、約 1500 ch~3000 ch は空気 層による減衰と見られる。そこでシンチレーションフィルムと PMT の間にドデカンを塗り、密 着させて測定するとピークが高エネルギー側にシフトしたことより、真のピークは約3500~4500 ch 付近だとみなした。そのピークに関してガウス関数でフィットしたところ、ピークの中心値は 3656 ± 8.5、Sigma 値は371.5 ± 5.9 と得られた。(図 5.39) これらの値は次節のエネルギーキャ リブレーションで用いる。



図 5.39: α線のピークをガウス関数でフィットした様子。

#### クエンチング

つまり今回の場合<sup>241</sup>Amから放射される 5.4 MeV の α 線のエネルギースペクトルが求めら れたが、クエンチングによって本来の発光より小さく検出してしまっているため、Flash ADC の チャンネルと放射線エネルギーをキャリブレーションすることができない。本来の発光とクエン チング後の発光を関係付けるファクターをクエンチングファクターという。KamLAND-LS のク エンチングファクターは約 13 と確かめられており [30]、α線の発光は実際よりも 1/13 倍されて検 出される。β線の発光からのエネルギーキャリブレーションを行い、シンチレーションフィルムの クエンチングファクターを算出する過程については後述する。

# 5.6 *β*の発光波形の測定

 $\beta$ 線源として <sup>90</sup>Sr を用いた。<sup>90</sup>Sr からは 0.54 MeV の線と <sup>90</sup>Y からは 2.28 MeV の  $\beta$ 線が放出される。<sup>90</sup>Sr の崩壊図を図 5.40 に示す。



図 5.40: <sup>90</sup>Sr の崩壊図

ただし、線源の図 5.40 にある通り、この  ${}^{90}$ Sr 線源はやや特殊な構造をしている。放射線の量を 増やすために線源の窓と反対側に金(Au) 皿があり、これによって窓とは反対側に放射される  $\beta$ 線を跳ね返している。さらに Al 製の窓があるために、 ${}^{90}$ Sr からの 0.54 MeV の  $\beta$  線はほぼ全て遮 蔽されている。



図 5.41: <sup>90</sup>Sr の線源の写真



図 5.42: <sup>90</sup>Sr 線源の設計図。奥の金皿によって反 対側に放出される β 線をはね返している。[31]  $\alpha$ 線と同様のセットアップ (図 5.2) で $\beta$ 線を測定した。以後図 5.43 を $\beta$ 線測定の基本セットアップと呼ぶ。その結果のエネル ギースペクトルを図 5.44 に示す。 $\alpha$ 線を同様、加筆しない限り は HV は 1400 V、Threshold は 850 ch (89 mV に相当)、測定 時間は 10 分間とする。



図 5.43: β線 (<sup>90</sup>Sr) 発光測 定の基本セットアップ



図 5.44: <sup>90</sup>Sr のエネルギースペクトルと半値幅スペクトル

#### 5.6.1 エネルギースペクトルの考察

β線のエネルギースペクトルについて考える。β線はエネルギー損失をほとんどしないはず であるが、α線の発光と重なる約 1500 ch から 5000 ch のにも何らかの発光が見られ、図 5.44 で はまるでピークが 3 つあるように見える。

以下では  $\beta$ 線のエネルギースペクトルを 3 つの領域に分け、ピークが何によるものであるの かを考察する。エネルギー [ch] が約 300~500 ch の小さなピークを 1st ピーク、約 500~1500 ch を 2nd ピーク、約 1500~5000 ch のピークを 3rd ピークと呼ぶことにする。 β線はエネルギー損失の小ささから、フィルム内で発光をせず にそのまま PMT に入射するものも多くある。1st ピークのエネ ルギーの小ささと数の少なさから、1st ピークはβ線が PMT の 光電面に当たったときに稀に信号として捉えられたのではない かと推察した。その可能性を考え、シンチレーションフィルム を置かずに線源と PMT のみで測定することにした。(図 5.45)



図 5.45: β線のみの発光測定

測定後のエネルギースペクトルと、従来のβ線、シンチレーションフィルム、PMT のセット アップで測定した時とを比較したエネルギースペクトルを以下に示す。



図 5.46:  ${}^{90}$ Sr のみの測定結果のエネルギースペ クトル 図 5.47: 黒:シンチレーションフィルムのみ、 水色: $\beta$ のみでの測定結果。ただしピークの高 さを揃えている

図 5.46 のエネルギースペクトルが得られた。ここでシンチレーションフィルムのみの時と比較 すると(図 5.47 ただし、ピークの高さを揃えてある。)<sup>90</sup>Sr のみの方が広がりを持っていること がわかる。さらに、この図に<sup>241</sup>Am のみの時のスペクトルを重ねると、図 5.48 が得られる。つま り、<sup>90</sup>Sr のみのときは<sup>241</sup>Am の時と同様に線源部が金属であることに由来する電気ノイズである 可能性が高い。続いて、<sup>90</sup>Sr のみの場合と、<sup>90</sup>Sr とシンチレーションフィルムの場合のエネルギー スペクトルを比較したものが図 5.48 である。



図 5.48: 黒:シンチレーションフィルムのみ、水色:βのみ、赤色:αのみでの測定結果。ただし ピークの高さを揃えている



図 5.49: 黒:シンチレーションフィルムのみ、水色:βのみ、ピンク色:<sup>90</sup>Sr での測定結果。

このように β 線のみのときの信号(図 5.49 の水色線)は 1st ピークとも 2nd ピークとも重なる ように見えるが、基本セットアップでは <sup>90</sup>Sr 線源と PMT の入射窓との間に介在物となっている ためこの効果は少ないものだと考えられる。

以上より、1st ピークは β線が直接 PMT の入射窓や光電面と反応して信号として検出されることや、電場の不安定さによるノイズということが分かった。

# 2nd ピーク (500~1500 ch) について

まず、α線とβ線のエネルギースペクトルを比較する。



図 5.50: 同じセットアップの $\alpha$ 線と $\beta$ 線のエネ図 5.51:  $\beta$ の最大のピークのカウント数に $\alpha$ の ルギースペクトル 1st ピークを揃えたもの。

図 5.50 より、β の 2nd ピークは α 線の測定においてノイズを考察した α の 1st ピークとは別 の由来のものだとわかる。さらに、シンチレーションフィルムを置かないときには現れなかった ことから、β 線とシンチレーションフィルムの相互作用による信号ということも言える。この信号 がシンチレーション光では無い可能性を考えると、β 線由来の他の発光現象にチェレンコフ放射が ある。チェレンコフ放射とは荷電粒子が物質中を通過するとき、その粒子の速度が物質中の光速 を超えるときにチェレンコフ光と呼ばれる光が放射される現象である。物質中の光速とは、光速 を c、物質の屈折率を n とすると c/n で表される。シンチレーション光は等方向な発光でその波長 は可視光領域であるのに対して、チェレンコフ光は荷電粒子の進む方向に円錐形に放出され、波 長のピークは紫外領域にあるという点で異なっている。KamLAND 検出器ではシンチレーション 光を観測するが、カミオカンデ実験、スーパーカミオカンデ実験ではニュートリノと反応した際 に放出される電子(またはミューオン)によるチェレンコフ光が間接的なニュートリノのシグナ ルとなっている。

シンチレーションフィルムでチェレンコフ放射が起きるときの $\beta$ のエネルギー条件を求める。  $\beta$ 線のエネルギーをE、速さをv、運動量をp、質量をm = 0.511 MeV、光速をc = 1シンチレー ションフィルムの屈折率をn = 1.33と表すと、

$$\frac{v > \frac{c}{n}}{E} = \frac{p}{\sqrt{p^2 + m^2}} > \frac{1}{n}$$

$$p^2 > \frac{m^2}{n^2 - 1}$$
(5.1)

運動量が求まったので、エネルギーに直すと、 $E^2 = p^2 + m^2$ より

$$E^2 > \frac{m^2}{n^2 - 1} + m^2 = \frac{0.511^2}{1.33^2 - 1} + 0.511^2 \simeq 0.6007$$
 (5.2)

$$E \geq 0.775 \tag{5.3}$$

となり、0.775 – 0.511  $\simeq$  0.26 MeV の  $\beta$ 線であればチェレンコ フ光を放出し得る。今回 <sup>90</sup>Sr から放射し得る  $\beta$ 線の最大のエネ ルギーはこのエネルギーを上回っている。

2nd ピークがチェレンコフ光であるとすると、紫外線吸収剤 をシンチレーションフィルムと PMT の間に挟めば遮蔽するこ とができる。よって紫外線吸収剤の含まれているアクリル板を 用いて、<sup>90</sup>Sr、シンチレーションフィルム、2mmのアクリル板 を 2 枚、PMT というセットアップで測定をした。



図 5.52: アクリル板によって 紫外線を吸収させた後の信号 を見るためのセットアップ

このときのエネルギースペクトルを図に、元の<sup>90</sup>Srによるシンチレーションフィルムの場合と<sup>90</sup>Srのみの場合と今回のアクリル板を挟んだときを比較したエネルギースペクトルを図に示す。



図 5.53: <sup>90</sup>Sr、シンチレーションフィルム、アク 図 5.54: 1st ピーク (水色) と全体 (ピンク色) と リル板、PMT の測定結果 アクリルを挟んだ場合 (青色)の結果を比較

図 5.53 及び図 5.54 より、3rd ピークは見えているものの 2nd ピークはアクリル板によって見え なくなったことより、2nd ピークはチェレンコフ光だったと解釈できる。

その次に $\beta$ 線の放出される方向と発光の関係を調べた。線源 からは球対称に放出されるため、 $\beta$ 線を遮蔽できる 5mm 厚 の銅板に穴を開け $\beta$ 線をコリメートした。穴の空いた銅板 は2種類あり、1つは半径 2 mm の穴を直線に開けたもの、 もう1つは長径 4 mm、短径 3 mm の穴を板の上面から下面 に向かって約 38 度斜めに開けたものである。



図 5.55: セットアップ



図 5.56: 実際に用いた銅板。どちらも 1.5 inch PMT を覆うサイズにカットしてある。



図 5.57: 直線コリメート



図 5.58: 斜線コリメート

 $\beta$ 線が直線に入射した時の方が斜めに入射した時よりも 2nd ピークは高いという結果になっ た。3rd ピークを  $\beta$ 線によるシンチレーション光と考えれば、斜めに入射する方がシンチレーショ ンフィルム内で励起される分子の量が増え、発光量が多くなるということにも頷ける。また、チェ レンコフ光は粒子の進行方向にチェレンコフリングと呼ばれるリング状に発光するため、直線に コリメートした場合は PMT の中心とチェレンコフリングの中心が重なりやすく検出効率も高く なる。一方で斜めに入射するコリメータではチェレンコフリングが PMT の側面に当たりやすく、 検出効率が悪くなると考えられる。以上より 2nd ピークは  $\beta$ 線のチェレンコフ放射だと分かった。 1st ピークの検証の際に  $\beta$ 線のみの測定でも 2nd ピークのエネルギー値に小さなピークが見られ たのは、PMT の入射窓(硼硅酸ガラス、屈折率~1.5)で発生したチェレンコフ光である可能性 が高い。

## 3rd ピーク

 $\beta$ 線はシンチレーションフィルム内でほとんどエネルギー損失をしないが、斜めに入射する などしてフィルム内の飛程が長くなった場合などに光ることがある。ただし、少ない光量であれ ば FlashADC の閾値 (Threshold) によりカットされる。さきほどから 3rd"ピーク"と呼んでいる が、2nd ピークと 3rd ピークがそれぞれ別の発光によるものであることを踏まえると、実際 1500 ch 付近に谷のように見える箇所は Threshold のカット部分に相当すると捉えられる。それを確認 するために Threshold を下げつつ同じように測定した。現在 Threshold は 850 ch (89 mV に相当 する) で行っているが、それを小さい方から 9 mV, 19 mV, 39 mV, 89 mV, 149 mV, 189 mV と 変えた設定でも測定した。それぞれで得られたエネルギースペクトルを比較する。



図 5.59: Threshold を下げて行った時のエネルギースペクトルの変化。Threshold が 850 ch (89 mV) のときに 2nd ピークと 3rd ピークの間の谷のように見えていたものは実は Threshold のカットによるものだったことがわかる。

図 5.59 のように谷の位置が charge の低い方に遷移していくのがわかる。つまり、図 5.44 で見 ているエネルギースペクトルは、フィルム内で β 線が落とすエネルギーの内、高エネルギーの部 分 (エンドポイント)のみを観測しているということになる。

### β線のフィルム内でのエネルギー損失のシミュレーション

 $\beta$ 線の発光エネルギーの較正を行うために Geant4 シミュレーションで 125 μm 厚のフィルム 中で <sup>90</sup>Sr から放出される  $\beta$  が損失するエネルギーのシミュレーションを行った。

#### ジオメトリ

ジオメトリは線源図 5.40 の通りに設定した。シンチレーションフィルムの上に β 線源を置き そこからランダムに β 線が放射される。

#### シミュレーションの結果

シミュレーションでされたときのフィルム内でのエネルギー損失とエネルギー損失が起こったフィルムないの位置である。ただし、実際は <sup>90</sup>Sr からの β 線は Al 製の窓で遮蔽されてしまうため <sup>90</sup>Y を考える。



図 5.60: シミュレーションによる  $\beta$ 線のエネルギー損失。左が <sup>90</sup>Sr のエネルギー損失(横 MeV 縦カウント)、右が <sup>90</sup>Y のエネルギー損失(横 MeV 縦カウント)

図 5.60 にあるように、シミュレーション結果では  ${}^{90}$ Sr と  ${}^{90}$ Y から放出される 0.54 MeV と 2.28 MeV の  $\beta$ 線のエネルギー損失はどちらも少なく、最大で 0.3 MeV 以下である。

#### シミュレーションを用いたエネルギーキャリブレーション

実際の測定では Threshold によるカットが入るためエネルギースペクトルは低エネルギー領域 に行くと途切れてしまう。(図 5.44) そのため、エネルギースペクトルをシミュレーションで得ら れたエネルギースペクトルでフィットし、エンドポイント(右端)のエネルギーキャリブレーショ ンを行った。このとき、シミュレーションの分解能をを定義するために§5.5.2 で求めた Sigma の 値を用いた。

$$\frac{\sigma}{\sqrt{Mean}} = \frac{Sigma}{Mean} \tag{5.4}$$

$$\sigma = \frac{Sigma \times \sqrt{Mean}}{Mean} \tag{5.5}$$

$$\simeq 6.144$$
 (5.6)

より、測定のスペクトルのエンドポイント付近の 5000 ch のσは

$$\sigma_{5000ch} = \sigma \times \sqrt{5000} = 6.144 \times \sqrt{5000} \simeq 434.4506 \tag{5.7}$$

と表される。 $434.45/5000 \simeq 0.087$ より、シミュレーションのエネルギースペクトルのエンドポイント付近 0.4 MeV のエラーを9%として、フィット関数にシグマを加えた。それをエネルギースペクトルにフィットすると、結果は図 5.61 のようになった。フィット関数の式は、パラメータを $p_0$ 、 $p_1$ として

$$E[MeV] = p_0 + 10^{p_1} \times C[ch]$$
(5.8)

と表している。 $p_0 = 0.0002364 \pm 0.0005098$ 、 $p_1 = -4.017 \pm 0.002$ という値が得られた。

このパラメータを用いて、<sup>241</sup>Amの $\alpha$ のエネルギーを計算すると、3656 ch では 0.3518±0.0016 MeV に相当する。実際の $\alpha$ 線のエネルギーは 5.4 MeV であることから、クエンチングファクター は約 15.3 であると分かった。



図 5.61: シミュレーションでのフィットの様子。得られた数字を元にエネルギーキャリブレーションを行った。

## 厚いプラスチックシンチレータによる β線の発光測定

今回用いた<sup>90</sup>Sr は 0.97MBq と高いレートの線源だった。発光イベント数そのものは<sup>241</sup>Am に比べると多いが、β線はエネルギー損失が小さいためフィルムを通過するものの中でも発光に 十分なエネルギーを損失するものは少なく、見えているイベントは通過するβ線のごく一部に過 ぎずないと考えた。そこで実際にシンチレーションフィルムを通り抜けるイベント数を調べ、そ の何%がシンチレーションフィルムで発光するのかを確かめることにした。

測定原理としては、<sup>90</sup>Sr から放射される  $\beta$ 線は約 1cm プラスチックシンチレータで全てエネ ルギーを損失することがわかっている。つまり、シンチレーションフィルムの代わりに 1cm 以上 のプラスチックシンチレータの発光を PMT で捉え、そのイベント数から PMT 側に放出されてい る  $\beta$ の数を数えた。

今回用いたのは縦 33mm、横 117.5mm、厚さ 20mm のプラスチックシンチレータである。また、Threshold によってカットされてしまわないよう、Threshold 値は 937cm 2 mV (935 - 4 mV) まで下げた。



図 5.62: プラスチックシンチレータ。縦 33 mm、横 117.5 mm、厚さ 20 mm

測定結果

プラスチックシンチレータでの $\beta$ 線の発光は HV を 1400 V に設定して 10 分間測定したとこ ろ、5,769,101 イベント(9,615 Hz)であった。そこから、線源がない状態での宇宙線や環境放射 線による発光 91880 イベント(153Hz)を引くと 5,677,221 イベント(9,462 Hz)になる。更に そこから  $\alpha$ 線のエネルギーピークでエネルギーが 2200ch 以上 4400ch 以下のイベントで、かつ、 電気ノイズやチェレンコフ光のものをカットするために半値幅が 4 以上 12 以下のイベントを選ぶ と、残りは 27,394 イベントになる。よって

$$27,394 \pm 166/5,677,221 \times 100 = 0.483 \pm 0.003\%$$
(5.9)

となる。つまり、フィルム型シンチレータを用いて Threshold で制限をかけることによって  $\beta$ 線 を 99%以上除去できていることがわかる。

# 第6章 粒子識別(波形弁別法)

データ波形によって粒子を識別する方法を波形弁別法(<u>Pulse Shape Discrimination、PSD</u>)法 と呼ぶ。§5よりβ線のエネルギー損失の小ささから、シンチレーションフィルムに入射するβ線 のうち実際に光るのは 0.47%にまで抑えることができた。しかし、この極低放射能環境で求めら れる測定感度は $\mu Bq/m^2$ レベルであるため、更にβ線の混入、ミスジャッジを防がなければなら ない。そこでα線とβ線をPSDによって区別し、さらなる感度向上を目指す。

そのため本研究では波形全体の情報を使って粒子弁別を行った。§4.3.2 で説明したように先 行研究でも α 線の発光波形は遅発成分が多いことが確かめられており、PSD の可能性が示唆され ていた [26]。



光波形の比較。時間 0 で同じ強度になるよう ピーク値で規格化されている。(再掲)[25]



[2] 吸収帯の厚さと透過率の関係

図 6.1: 粒子ごとのプラスチックシンチレータでの発光の違い

# 6.1 PSD 手順

PSD を行う手順を記す。

1.  $\alpha$ 線源、 $\beta$ 線源を用いて図 4.9 の通りに発光を測定する。本実験では先述の通り FlashADC を用いているため波形を記録できる。

- α線とβ線はエネルギー損失の大きさの違いより、同じ発光エネルギーのイベントでも波形 に違いが現れる。片側感度を確かめたときの図より、基本セットアップにのみ現れる発光の ピークのエネルギー領域でイベントを選び出す。
- 3. 2 で決めたエネルギー領域で取り出した α 線と β 線それぞれのイベントを重ね書きした。 Flach ADC は1つのビン幅が1 ns であるので、重ね書きした波形を1 ns ごとにガウスフィッ トし平均値を求め、平均波形を作成した。以下、これを基準波形と呼ぶ。平均波形を作る。 以後、この波形のことを α の/β の基準波形と呼ぶ。
- 4. 表面汚染測定をした波形データをそれぞれの基準波形でフィッティングする。

5. カイ二乗を計算する。

# **6.2** *α*線、*β*線の基準波形

各粒子に対して基準波形を作成することで、測定した波形と基準波形の違いを基に PSD を行うことが可能である。また、実際にシンチレーション光の発光の違いを確認する上でも重要である。本実験では  $\alpha$ 線は <sup>241</sup>Am の  $\alpha$ 崩壊、 $\beta$ 線は <sup>90</sup>Sr の  $\beta$ 崩壊を利用した。

## 6.2.1 作成手順

#### 波形選択

α線の発光は2つ目のピークとわかっているため、2つ目のピークのエネルギー領域のイベ ントを取り出す。なおかつ、半値幅の細い波形はチェレンコフ光とノイズであるため、半値幅に よりカットする。<sup>90</sup>Sr でも同じエネルギー領域でカットする。(図 6.2、図 6.3)



図 6.2:  $\beta$ 線の横軸エネルギーと縦軸半値幅の3 図 6.3:  $\alpha$ 線の横軸エネルギーと縦軸半値幅の3 次元プロット(ただしz軸はLogスケール) 次元プロット(ただしz軸はLogスケール)

# 重ね書き

取り出したイベントのデータ波形を重ね書きする。ここで、波形は横軸が時間、縦軸が波高 (電圧)で表されるが、波形データはピークの位置がずれるので重ね書きするときはずれないよう 各データ共通の基準を作る必要がある。各イベントはピークの立ち上がりも波高もバラバラであ るため、波高(縦軸)が変わっても時間(横軸)の変位が最小となる時間 *T<sub>std</sub>* を基準としたい。

まずは立ち上がり時間をスタートとして時間経過につれて波高を積分していき、全体の面積の何%の位置にあたる横軸の値をtとして、すべてのイベントのtを揃えて重ね書きした。図 6.4 は全体の 10%、20%、30%、40%、50%、60%に当たる位置をそれぞれtとして固定したものである。固定する面積の割合の位置により波形の広がり方に違いがあることがわかる。



図 6.4: 全体の面積のそれぞれの%の値になった時間で各波形データの横軸を揃えて重ね書きした 波形 6つの重ね書きした波形を比べると10%や20%のtの位置で合わせた時に広がりが狭くなっていることがわかる。これらの時のtはピークの位置とほぼ一致するため、重ねた波形のずれが小さくなった。このように、揃える位置によって波形の不定性が異なることから、最も不定性が少なくなる位置を求める。

### 積分波形

そこで、積分波形を作りその波形の傾きから  $T_{std}$  を求めた。積分波形とは、基準波形の波高を時間 0 ns からそれぞれ足しあわせたものである。ここではまず  $\alpha$  の基準波形作成のために選び 出した波形データを横軸 t を固定せずに作成し、横軸を t 、縦軸を 0 ns から t ns までの波高の 総和として積分波形を作成した。(図 6.5)

続いて、横方向のずれを最小にする基準時間  $T_{std}$  を求める。ずれが最小になる、とは縦軸(波高)の変動に対し横軸(時間)の値の変動が小さいということである。ゆえにこの積分波形で微分系数が最も大きいtの値が基準時間  $T_{std}$  となる。積分波形により微分系数が最大となるのは 10.5 ns と分かった。全体の面積が 3715.35 ch であるのに対し、0 ns~10.5 ns の面積は 271.075 ch である。271.015/3715.35  $\simeq$  0.073 より、基準時間  $T_{std}$  は 0 ns からの累計面積が全体の 7.3%になる時間とする。



図 6.5: 作成した積分波形

#### 作成した基準波形

得られた基準波形を図に記す。α線とβ線の波形の違いは目ではっきりと見えるスケールで はないため、1枚目の縦軸(波高)をログスケールで描いた図を載せる。



図 6.6: エネルギーカットで作成した基準波形。黒がα線でピンクがβ線である。

# 6.3 カイニ乗検定 (Persons's $\chi^2$ Test )

実際の測定波形に基準波形でフィットし、時間と波形の面積を変化させて最小となる  $\chi^2$  を求めた。 $\chi^2$ は以下の式 6.1 で定義している。

$$\chi^2 = \sum_{i=0}^{N} \frac{(n_i - \nu_i)^2}{\sigma^2}$$
(6.1)

ただし、 $\nu_i$ は基準波形の *i* 番目の ADC 波高、 $n_i$ は測定波形の *i* 番目の ADC 波高である。調べ たい波形データを  $\alpha$ 線の基準波形、 $\beta$ 線の基準波形と比較しそれぞれの  $\chi^2$  を計算した。ここで、 波形データの x 軸(時間)のエラーはビン幅1より 0.5 とし、y 軸(波高)は電気ノイズのエラー  $\sigma_{base}$  としてペデスタル値をガウス関数フィットで求めた時の値 0.8416 としている。

# 電気ノイズのエラー $\sigma_{base}$

波形取得の際、ペデスタルの値を揃える必要がある。ペデスタルの取得方法は、§4 で述べた とおりである。ペデスタルは波形データ1つ1つで取得しているため、イベントの数だけペデス タルの値がある。測定ごとにフィットの際に求めたσのヒストグラムを作成し、その Mean 0.8416 をその測定における電気ノイズのエラーσ<sub>base</sub> とした。(図 6.7)

## 6.3.1 解析結果

半値幅を 4~12 ch の範囲、エネルギーを 2500~4400 ch の範囲で取り出した結果を以下に記 す。この時  $\beta$ 線の数は、飛来している内の 0.48%であった。



図 6.7: ペデスタルの様子



図 6.8:  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ のヒストグラム。黒は <sup>241</sup>Am でピンクは <sup>90</sup>Sr

<u>く 0.1: 取待効率 こ 残留</u>	
$\alpha$ 取得率	$\beta$ 残留率
90 %	11 %
95~%	20~%
99~%	56~%

表 6.1: 取得効率と残留率

先述した通りシンチレーションフィルムを用いているために、すでに通過するβをフィルム の薄さによるカットとエネルギーカットで0.483±0.003%までカットできている。これらのカット

と今回の残留率を掛け合わせることで $\alpha$ 線を 90%取得した時、 $\beta$ の残留率は 5.30 ± 0.03 × 10<sup>-2</sup> ~5.3 × 10<sup>-2</sup>% となる。これは実際に表面汚染からの  $\beta$ 線が  $n_{\beta}$  個入射した場合、そのうちの 5.2×10<sup>-4</sup> $n_{\beta}$  個が PSD で $\alpha$  として検出されるということである。

# 6.4 オリジナルパラメータ

カイ二乗は ROOT に含まれる MINUIT が独自の方法で計算したものである。より高度に判 定するために、独自のパラメータ S を設定した。

$$S^{2} = \sum_{i=1}^{N} \frac{b_{i}(n_{i} - a(\sum n_{pi})\nu_{i}(\Delta t))^{2}}{\sigma^{2}} + (\frac{\Delta t}{\sigma_{time}})^{2} + (\frac{a-1}{\sigma_{a}})^{2}$$
(6.2)

ただし  $\sigma^2$ は

$$\sigma^2 = N\sigma_{base}^2 + \sum_{i=1}^N n_{pi} \tag{6.3}$$

と定義した。変数として  $\Delta t$  と a を設定し、 $S^2$  が最小となる値を求めた。

- N:ビン数(1つの波形は 0 ns ~ 309 ns までとしているため、310 となる)
- $b_i$ : Window Function (§ 6.4.1)
- *n<sub>i</sub>*:*i*番目のデータ波高
- a:スケールパラメータ
- $\sum n_{pi}$ :  $\frac{\overline{w}\overline{v}\overline{r}-\overline{\rho}\sigma\overline{n}\overline{h}}{1p.e.\sigma\overline{n}\overline{h}}$ …photon 統計のゆらぎ
- ν<sub>i</sub>(Δt): i + Δt 番目の基準波形の波高
- *σ<sub>base</sub>* (電気ノイズのエラー): 0.8416
- $\sigma_{time}$ : 1
- $\sigma_a : \frac{1}{\sqrt{\sum n_{pi}}}$

#### 6.4.1 各記号の説明

## 1 光電子 (1 photon electron,以下 1p.e.) $\sigma_{1p.e.}$

1p.e. 統計のゆらぎを考慮するために、PMT で 1p.e. を測定した。測定は暗箱内で線源の無い状態で閾値(Threshold)をペデスタル値から1 mV ごとに大きくして測定したところ、4 mV で測定した時のエネルギースペクトルに 1p.e のピークが見られた。1p.e. のエネルギースペクトルをガウス関数と二次関数の足し合わせによってフィットした結果、ピークの中心値は 23.01 ± 0.03[ch]、 $\sigma$ は4.23 ± 0.03 だと分かった。つまりエネルギー 23.01 ch が 1p.e. に相当するというこ

とである。photon 統計のゆらぎは $\sum n_{pi}$ で与えられる。(図 6.9) ここでこのとき得られた 1p.e. の波形は図 6.10 のようになった。



図 6.9: 1p.e. のエネルギースペクトルのフィットの様子



図 6.10: 1p.e. の波形

# 6.4.2 Window Function

基準波形は横軸 t によって  $\alpha$  の基準波形と  $\beta$  の基準波形の違いの大きさが異なっている。(図 6.6) よって、基準波形の違いが大きいところに重みが付くように Window Function を設定した。 Window Function の定義は、基準波形の時間を x、波高を y としたとき

$$\frac{y_{alpha}[x]}{y_{beta}[x]} \tag{6.4}$$

と定義した。ただし、*x* < 50 と 150 < *x* の領域では離散値となっていたため *x* < 50 では 1、150 < *x* では 2.6 と固定した。(図 6.11)



図 6.11:  $\frac{y_{alpha}[x]}{y_{beta}[x]}$ 。ただし、x < 50 では 1、150 < x では 2.6 と固定している。

# 6.4.3 解析結果

半値幅を 4~12 ch の範囲、エネルギーを 2500~4400 ch の範囲で取り出した結果を以下に記 す。この時  $\beta$ 線の数は、飛来している内の 0.48%であった。



図 6.12:  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ のヒストグラム。黒は <sup>241</sup>Am でピンクは <sup>90</sup>Sr

表 6.2: 取得効率と残留率

$\alpha$ 取得率	$\beta$ 残留率
90 %	8 %
95~%	14~%
89~%	35~%

先述した通りシンチレーションフィルムを用いているために、すでに通過する  $\beta$ をフィルムの薄さによるカットとエネルギーカットで 0.483±0.003%までカットできている。これらのカットと今回の残留率を掛け合わせることで  $\alpha$  線を 90%取得した時、 $\beta$  の残留率は 3.99±0.03×10<sup>-2</sup> ~4.0×10<sup>-2</sup>% となる。これは実際に表面汚染からの  $\beta$  線が  $n_{\beta}$  個入射した場合、そのうちの 4.0×10<sup>-4</sup> $n_{\beta}$  個が PSD で  $\alpha$  として検出されるということである。

以上より、 $\chi^2$ 検定よりもオリジナルパラメータで PSD を行う方がより高い識別が可能である ことが明らかになった。

# 第7章 結論と将来計画

# 7.1 結論

本章では、本研究「シンチレーションフィルムによる表面汚染測定法の開発」によって得ら れた知見を記す。本研究の目的はフィルム型プラスチックシンチレータ(シンチレーションフィル ム)を用いて、対象物の表面の α 線を測定することで表面汚染が起こっているかを判定すること であった。成果をまとめると以下のようになる。

- シンチレーションフィルムの片側を透明フィルムでラミネートすることにより、α線に対し片側感度をもたせることができた。
- シンチレーションフィルムを用いることによって、エネルギー損失の大きいα線はほぼ 100%検出することができ、エネルギー損失の比較的小さいβ線は最大99.53%カットするこ とができた。また、電気ノイズは発光波形のエネルギーと半値幅で除去することができると 分かった。
- 半値幅&エネルギーカットとカイ二乗検定を用いた PSD によって、シンチレーションフィルムでの α 線の発光を 90%取得したとき、β 線の残留率は約 11%となる。
- 半値幅&エネルギーカットと新しく設定したオリジナルの PSD パラメータ S<sup>2</sup> を用いたところ、α線の発光を 90%取得したとき、β線の残留率は 8.3%となる。
- これらと $\beta$ 線の発光率0.48%を合わせると、 $\beta$ 線の最終検出率はカイ二乗検定では $5.3 \times 10^{-2}$ %、 オリジナルの PSD パラメータ  $S^2$  では $4.0 \times 10^{-2}$ % とまでなった。

#### 7.1.1 達成感度

本研究で、神岡鉱山内でミニバルーンの表面汚染を測定した場合の達成感度を見積もる。1、 岩盤中の  $^{232}$ Th からの  $\gamma$  線のフラックスは

岩盤中の<sup>232</sup>Thの量 = 
$$3.8 \times 10^{-6}$$
g/g (7.1)

$$\sim 1.6 \times 10^{-2} Bq/g$$
 (7.2)

$$\sim 1.6 \times 10^{-2}$$
gamma/sec/g (7.3)

で表される。岩盤 10cm 厚を考えると、

$$(1.6 \times 10^{-2}) \text{gamma/sec/g} \times 2.7 \text{g/cm}^3 \times 10 \text{cm} = 0.43 \text{gamma/sec/cm}^2$$
(7.4)

 $\sim 4300 \text{gamma/sec/m}^2$  (7.5)

である。

2、 $\gamma$ 線が周囲の物質とコンプトン散乱するため、周囲の物質として 1 mm 厚のプラスチック 板があると仮定する。その場合  $\gamma$ 線がプラスチック板に入射することにより放射される  $\beta$ 線を計 算する。このとき線吸収係数を  $\mu$ (cm<sup>-1</sup>) とし、 $1/\mu \sim 30$  cm となることを利用すると  $\gamma$ 線に対し 放出される  $\beta$ 線の数は

$$\sim 1 - exp(-\frac{0.1}{30})$$
 (7.6)

= 0.0033electron/gamma (7.7)

となる。

3、電子のフラックスは

$$4300 \text{gamma/sec/m}^2 \times 0.0033 \text{electron/gamma} = 14 \text{electron/sec/m}^2$$
(7.8)

で表される。

ここでシンチレーションフィルムの薄さと PSD で得られた  $\beta$ 線の最終検出率 3.9×10<sup>-2</sup>% より、バックグラウンドとなりうる  $\beta$ 線は

$$14 \times \frac{4.0 \times 10^{-2}}{100} = 5.6 \times 10^3 \mu Bq/m^2 \tag{7.9}$$

である。例として 10 cm 厚の鉛ブロックで  $\gamma$ 線のフラックスを 1/100 倍したとすると、バックグ ラウウンドとなる  $\beta$ 線は 56 $\mu$  Bq/m<sup>2</sup> となる。このバックグラウンドが 100 events になる時間は 約 51 時間である。よって表面汚染を 51 時間測定した場合の 90%C.L. での感度は

$$1.64 \times \sqrt{56} \mu Bq/m^2 \sim 12 \mu Bq/m^2$$
 (7.10)

であり、目標感度である~10µBq/m<sup>2</sup>の達成が可能である。なお図 7.1 は鉛ブロックで囲った測定 環境のイメージ図である。



図 7.1: 鉛ブロックで囲んでいるイメージ図。ただし見やすさのために PMT や一部の鉛ブロック は省いており、実際は全面を鉛で覆うことを想定している。

KamLAND-Zen400 実験 第2フェーズを想定した場合

ここで仮定として、KamLAND-Zen400 実験開始前にミニバルーンの表面汚染を測定して表 面汚染を見つけ、表面汚染のないクリーンなバルーンで観測を開始したとする。その場合、有効体 積はミニバルーンの体積の 88%である 13.5m<sup>3</sup> となり [37]、第2フェーズの体積の 6.7 m<sup>3</sup>[17] の 2 倍、つまり第2フェーズのときの  $0\nu\beta\beta$  のイベント数を n、 $0\nu\beta\beta$  の半減期を  $T_{1/2}^{0\nu}$  とすると、6.7m<sup>3</sup> あたりのイベント数は  $\frac{\sqrt{n^2\times 2}}{2}$  となり、半減期は  $\sqrt{2}$  倍となる。よってニュートリノのマヨラナ有 効質量の上限は  $1/\sqrt{\sqrt{2}}$  倍まで制限を与えることができる見込みである。KamLAND-Zen400 の 第2フェーズの半減期 9.2 ×  $10^{25}yr(90\% C.L.)$ を用いて計算すると、現行の(61 - 165) meV を上 回り、(~ 55 - 150) meV まで向上できると考えられる。

#### 7.1.2 課題

表面汚染測定の精度を高めるための今後の改善点を挙げる。

- パラメータの最適化
- <sup>241</sup>Am、<sup>90</sup>Sr 以外の線源での発光測定、基準波形の作成
- ラミネート方法の最適化

カイ二乗分布とオリジナルパラメータによって PSD を行ったが、改善点としてはエラーを網 羅すること、パラメータの最適化、評価方法の改良で更なる識別能の改善が見込まれる。また、今 回 α線として<sup>241</sup>Am、β線として<sup>90</sup>Sr を用いたが、他のα線、β線を含めて更に普遍性の高い基 準波形を作ることが必要である。また、今回は市販のラミネート加工用シートを用い、ミニバルー ンフィルムでは片側感度の確認をするにとどまったが、今後は高感度化のためにミニバルーンフィ ルムでのラミネート方法を確立し、完全にミニバルーンフィルムに移行する必要がある。

# 7.2 本研究の将来計画

本研究の将来計画として、シンチレーションフィルムの発光を集光ミラーで効率良く検出し、 より広範囲の表面汚染を測定するというものがある。(集光ミラー試作品、図 7.2)集光ミラーは KamLAND-Zen の次期実験である KamLAND2-Zen で取り付けることを計画され、現在研究開発 中の集光装置である。PET にアルミニウムを蒸着した素材で作成し、集光率が 1.8 倍に向上する ことが明らかになっている [38]。シンチレーションフィルムの発光をウィンストンコーンで集光 し、KamLAND-Zen で用いている高精度の 17 inch または 20 inch の PMT で測定することで高感 度化が実現できる可能性がある。そのウィンストンコーンを利用した本研究での将来実験は、ま ず、表面汚染測定をする対象物の表面にラミネートフィルムを接着させ、そこに PMT に取り付け たウィンストンコーンを被せて発光を測定するというものである。この表面汚染測定の大きなメ リットは、大型の対象物でも動かしたり測定装置の中に入れることがなく表面汚染測定が行える という点である。



図 7.2: 集光ミラーの試作品。PET にアルミニウムが蒸着されている。[38]



図 7.3: 小型・大型対象物の表面汚染を集光コーンと組み合わせて測定する。

# 付録

# Th 系列測定の PSD

前章の PSD 法を実際の測定で試すには α 線また は β 線を放射する元素が必要である。今回は Th 系列の元素を測定対象とした。



図 7.4: <sup>232</sup>Th 壞変系列

## 測定原理

線源<sup>212</sup>Pbを溶解させた直鎖アルキルベンゼン(Linear Alkyl Benzene、LAB)を用いた。 LABとは

LAB は KamLAND-Zen 実験の将来実験である KamLAND2-Zen 実験計画で新しい液体シン チレータの溶媒の候補に挙がっている。製造過程で不純物が含有されてしまうものの、モレキュ ラーシーブを用いた吸着純化によって除去することができ、LAB を溶媒とした場合発光量は5%増 加し、光透過率に優れた新しい液体シンチレータの実現が確かめられている [34]。今回は活性炭 によるカラム法を用いた純化が行われており、シンチレーション光、チェレンコフ光の波長領域 での高い透過率を実現した LAB を用いた(屈折率~1.4、密度 0.86 g/cm<sup>3</sup>) [35]。(図 7.5)



図 7.5: 活性炭処理後の LAB 透過率。赤線は静置法による純化、緑線はカラム法による純化、黒線は未純化 LAB

# バブリングによる<sup>212</sup>Pb の溶解

 $ThO_2$  粉末を封入したガラス管に窒素を流して LAB にバブリングすることで、窒素と共に 流れ出した <sup>232</sup>Th の崩壊過程で生じる <sup>220</sup>Rn が LAB に溶解される。よって <sup>220</sup>Rn の孫核である <sup>212</sup>Pb が溶解した LAB となる。バブリングは東北大学金属材料研究所のアルファ放射体実験室で 3 時間 25 分間行った。



図 7.6: Rn のバブリング装置外観 [36]

セットアップ
表 7.1: Rn バブリングについて	
場所	東北大学金属材料研究所
	アルファ放射体実験室
開始時間	2017/11/29 11:55
終了時間	2017/11/29 15:20
バブリング時間	3時間25分

LAB は液体であるためシンチレーションフィルム 4 枚の間に 1 滴ずつ垂らし、シンチレー ションフィルム同士で挟みシンチレーションフィルムで発光が見られるようにした。測定は HV 1500V、Threshold 750ch(189 mV)で 20 時間 2 分行った。ただし、測定を開始したのはバブリ ングを行ってから 50 時間後の崩壊が進んだ状態であった。



図 7.7: キャプション

#### 測定結果

エネルギースペクトルと、エネルギーと半値幅の2次元ヒストグラムを以下に示す。(図 7.8、 図 7.9) 500ch は信号ではなく PMT や  $\gamma$ 線由来のノイズである。§ 5より、500~1400 ch は  $\beta$ 線 によるチェレンコフ光と見られる。続いておよそ 1500 ch より高いエネルギー領域に長く続くスペ クトルについて考察する。まず Th 系列の  $\alpha$ 線のエネルギーを考えると、<sup>212</sup>Bi からは 35.94%で 6.051 MeV のものが、<sup>212</sup>Po からは 8.785 MeV の  $\alpha$ 線が放出される。クエンチングを考慮したエ ネルギーキャリブレーションによると 6.051 MeV は 4110 ch 付近、8.8 MeV は 6030 ch 付近にピー クが来ると算出される。しかし今回のセットアップを考慮する必要がある。まず  $\alpha$ 線は LAB でも エネルギー損失をするため実際のエネルギーはもっと低くなるはずである。そしてシンチレーショ ンフィルムを 4 枚に重ねているが、上では  $\alpha$ 線がシンチレーション光を放出しても下にあるシン チレーションフィルムで減衰してしまう。一方  $\beta$ 線は透過率が高いため、上部でも下部でもフィ ルムを突き抜けることになる。本実験では信号は  $\beta$ が多くなると予想される。また、 $\beta$ 線がチェレ ンコフ光を出すとわかっているが、チェレンコフ光は一度にたくさんの光子が出るために、ピー クが高く幅の狭い波形になる。よって半値幅の低い領域はチェレンコフ光である可能性が高い。



図 7.8: LAB のシンチレーション発光のエネルギースペクトル



図 7.9: エネルギーと半値幅の2次元ヒストグラム

## $\mathbf{PSD}$

今までの議論をまとめると、

- シンチレーションフィルムを重ねたため上部の α 線は PMT に届く前に遮蔽され、シンチレーション光は減衰してしまうため少なくなるが β 線はフィルムが厚いほどエネルギー損失が大きくなり発光量も増える。
- 原理的に LAB でチェレンコフ光も出る。チェレンコフ光は半値幅が狭くおよそ 2 以下である。(§5.6、 図 7.9 より) となる。

以上から、① $\alpha$ 線と $\beta$ 線による信号(ただし、セットアップの条件から $\beta$ 線の数が圧倒的に多い と推測される)、② $\beta$ 線の信号(エネルギー損失の計算より $\alpha$ 線が混入することはない)、③チェ レンコフ光と見られる半値幅の狭い信号 の3つの領域に分けてそれぞれ PSD を行った。その時 の結果を $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ のスペクトルと、その領域全体のエネルギースペクトルと、 $\alpha$ 取得効率 90%で カットした alpha-like の信号のエネルギースペクトルである。(図 7.11、図 7.12、図 7.13)



図 7.10: LAB の発光イベントを3つの領域に分けて PSD を行った。

### PSD の結果



図 7.11: 1. $\alpha$ 線または  $\beta$ 線の信号の PSD 結果。左図は  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ 。ほとんどが  $\beta$ -like と見なせる。 右図は  $\alpha$  が 90%以上取得カットをかける前後のエネルギースペクトル。青がカット前で赤がカッ ト後の  $\alpha$ -like のエネルギースペクトル



図 7.12: 2. $\alpha$  以外の発光の PSD 結果。左図は  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ 。ほとんどが  $\beta$ -like と見なせる。右図は  $\alpha$  が 90%以上取得カットをかける前後のエネルギースペクトル。青がカット前で赤がカット後の  $\alpha$ -like のエネルギースペクトル



図 7.13: 3. チェレンコフ光と思われる信号の PSD 結果。左図は  $\chi^2_{\alpha} - \chi^2_{\beta}$ 。  $\alpha \ge \beta$  のピークが重なっているように見える。右図は  $\alpha$  が 90%以上取得カットをかける前後のエネルギースペクトル。青がカット前で赤がカット後の  $\alpha$ -like のエネルギースペクトル

### PSD の結果の考察

1~3 に関して概ね予想と一致する結果が得られた。3. に関してはチェレンコフ光の波形は $\alpha$ とも $\beta$ とも一致せず、結果として $\alpha$ とも $\beta$ とも決めがたい結果になったものと思われる。また、セットアップの改善点としては、今回のようにバブリングから時間を空けることなくバブリング 直後に行うことと、フィルム枚数を減らして長時間測定することが挙げられる。

## 参考文献

- [1] The ATLAS collaboration, "Observation of a new particle in the search for the Standard Model Higgs boson with the ATLAS detector at the LHC", Phys.Lett.,B(2012).
- [2] CMS collaboration, "Observation of a new boson at a mass of 125 GeV with the CMS experiment at the LHC", Phys.Lett., B(2012).
- [3] Nakamura,H.;Shirakawa,Y.;Takahashi,S.;Shimizu,H. <sup>[</sup>Evidence of deep-blue photon emission at high efficiency common plastic ] EPL, 95, 22001 (2011).
- [4] R. Davis et al., Phys. Rev. Lett. 20, 1205 (1968).
- [5] A. Gando et al., Phys. Rev. D83 052002,(2011)
- [6] 中家 剛,『ニュートリノ物理 ニュートリノで探る素粒子と宇宙』共立出版.(2016).
- [7] T. Yanagida. KEK. in Proceedings of the Workshop on Unified Theory and Baryon Number in the Universe, O. Sawada and A. Sugamoto (eds.) Tsukuba, Japan,)(1979).
- [8] J.J. G CID3omez-Cadenas, et al. (2012) <sup>The</sup> Seach for neutrinoless double beta decay Riv. Nuovo Cim. 35, 29
- [9] A. Gando et al. (KamLAND-Zen Collaboration), "Search for Majorana Neutrinos Near the Inverted Mass Hierarchy Region with KamLAND-Zen", Phys. Rev. Lett., Vol. 117, p. 082503 (2016).
- [10] Zwicky, F., "Republication of: The redshift of extragalactic nebulae" Helv. Phys. Acta, 6, 110 (1933)
- [11] キャサリン・フリース『宇宙を創るダークマター「宇宙カクテル」のレシピ』日本評論社 (2015).
- [12] 中田 貴広「カムランド禅用ミニバルーンの開発研究」修士論文, 東北大学.(2012)
- [13] 松田 さゆり「第一期 KamLAND-Zen 実験における<sup>136</sup>Xe のニュートリノを伴わない二重 β 崩壊に対する制限」修士論文, 東北大学 (2013).
- [14] A. Gando et al., Phys. Rev. Lett. 110, No.6, 062502, (2013)
- [15] K.Asakura, et al Results from KamLAND-Zen arXiv:1409.0077v1[physics.ins-det] (2014).
- [16] 大木 歩「新トリガーによる KamLAND-Zen 実験での 10C バックグラウンド」修士論文, 東 北大学 (2013).

- [17] 松田 さゆり「Search for Neutrinoless Double-Beta Decay in 136Xe after Intensive Background Reduction with KamLAND-Zen」博士論文, 東北大学 (2016).
- [18] 小林 兼好, 平出 克樹「XMASS の現状と展望」『高エネルギーニュース』第 32 巻 1 号 (2013).
- [19] カイ・マルテンス「なぜ WIMP を探すのか、どうやって捕らえるのか」『Kavli IPMU News』 No.23 (2013).
- [20] Baldini, A. et al., IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. 13pp.547-555.
  DOI:10.1109/TDEI.2006.1657967 (2006).
- [21] 岡 直哉「XMASS 実験における検出器材料由来バックグラウンドの研究」修士論文,東京大学 (2014).
- [22] 安部 航「XMASS 実験の現状と将来計画」『ICRR NEWS』No.91 (2014).
- [23] 鈴木洋一郎, 中畑雅行「季節変動によるダークマターの探索 (XMASS 実験の最新の結果)」 http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/xmass/whatsnew/whatsnew-20150907.pdf (2015).
- [24] 山田 勝彦『放射線測定技術』, 通商産業研究社. (2011)
- [25] Glenn F. Knoll 『放射線計測ハンドブック(第4版)』, オーム社, (2013)
- [26] 小原 脩平「KamLAND-Zen 実験における<sup>214</sup>Bi バックグラウンド除去のための発光性バルー ンフィルムの開発研究」修士論文, 東北大学.(2015)
- [27] Itaru Shimizu <sup>1</sup>An Evidence for Spectral Distortion of Reactor Anti-Neutrinos and A Study of Three Flavor Neutrino Oscillaton」博士論文, 東北大学 (2005).
- [28] 丸藤 祐仁,井上 邦雄「KamLAND-Zen 実験」『高エネルギーニュース』第 30 巻 3 号 (2011).
- [29] Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Vol.835, p.185-225(2016).
- [30] 吉田 学立「Limit on Majorana Neutrino Mass with Neutrinoless Double Beta Decay from KamLAND-Zen」博士論文, 東北大学 (2014)
- [31] 『製品カタログ』公益社団法人 日本アイソトープ協会.
- [32] 榎本 貴哉「波形弁別能力を実装した新しい小型原子炉ニュートリノモニターの開発研究」修 士論文, 東北大学 (2015).
- [33] 吉田 学立「液体シンチレータでの粒子識別による α 線バックグラウンド除去の研究」修士論 文, 東北大学 (2011).
- [34] 大浦 智也 「KamLAND2-Zen 実験に向けた新液体シンチレータの純化」修士論文, 東北大学 (2016).

- [35] 上澤 康平「KamLAND2-Zen 実験で用いる新液体シンチレータの活性炭による純化」修士論 文, 東北大学.(2018)
- [36] 寺岡 夕里「金属スカベンジャーによる KamLAND-Zen の低放射能化に関する研究」修士論 文, 東北大学.(2017)
- [37] 渡辺 寛子「Simulation of Double Beta Experiment」http://www.awa.tohoku.ac.jp/ ~hiroko/KamLAND/XePhaseWiki/Double\_Beta\_Simulation/Home.html
- [38] 立花 創「KamLAND2-Zen 実験のための集光ミラーの研究開発」修士論文,東北大学 (2015).

# 謝辞

本研究を行うにあたり多くの方からご指導、ご協力をいただきました。この場を借りて感謝 の意を述べたいと思います。

センター長である井上邦雄先生には、大学一年生の面談の時に非常に楽しそうに KamLAND 実験やニュートリノのお話をしてくださったのが印象的で、ニュートリノセンターに入りたいと 思うきっかけを与えていただきました。また本研究で結果をまとめる際にも鋭いご指摘やご助言 を数多くいただき、先生の幅広い知識や深い知見のおかげで狭くなってしまった視野を広げるこ とができました。池田晴雄先生には4年生の卒業研究から始め、全てに渡ってご指導いただきまし た。プログラム初心者の私は池田先生レベルの解析プログラムを作成することができず、夜遅く までご指導していただいたことも多々ありました。非常に手のかかる学生でご迷惑をおかけした ことばかりだと思いますが、どんな時も丁寧に明るく教えてくださって本当に頭が上がりません。 また、科学だけでなくあらゆる分野への知識やどんな装置も自分の手で作るという心意気に圧倒 されることばかりでした。池田先生にほんの少しでも近づけるよう、今後精進していきたいと思 います。白井淳平先生は学部生の時の実験学の講義の分かりやすさがとても印象的でした。ハツ ラツとした姿勢や気さくなお人柄でお話しする機会がとても楽しみでした。また、OD 作業の第1 週目でご一緒させていただきましたが、まるで部活動のようにチームワークを発揮して働くのが とても楽しかったです。古賀真之先生は神岡で大変お世話になりました。いつも組織全体や個人 の成長のために鋭いコメントをしてくださり、厳しさの中の優しさに感動することもしばしばあ りました。一般教養の乏しい私ですが、古賀先生と一緒に工業新聞を読んだり、世界地図・google map を見たり、ツールドフランスを観戦したりして、今まで接する機会のなかった興味深い世界 に気づくことができました。三井唯夫先生には、暗黒物質の理論の点で訂正をいただいたり、PSD のパラメータについてご助言をいただきました。穏やかな人柄ですがズバっと本質を突くコメン トをくださり、理解に追いつこうと必死でした。母と出身中学校が同じという共通点が見つかっ てとても嬉しかったです。清水格先生には学生実験から始まりお世話になりました。多くの学生 を指導していることに驚くことばかりでした。発表練習にも付き合ってくださり、どんな質問を しても丁寧に答えてくださってありがたかったです。中村健悟先生は神岡でお世話になり、中村先 生の声を聞くと神岡に来たなあという実感が湧くようになっていました。いろいろな作業でご指 **導いただきましたが、どんなときもまず全体像を把握させてくれ、作業の意義を教えてくださる** ので意欲をもって行うことができました。玉江京子先生にはプログラムのご指導を始め、学生生 活などの相談にものっていただきました。その優しさに触れると悩み事もささいなことだと思え るので不思議でした。サイエンスエンジェルの活動も薦めてくださり、玉江先生のおかげで充実 した大学院生活となりました。丸藤祐仁先生はシンチレーションフィルムに関してやミニバルー ン作業でご指導をいただきました。シフトに入っている一人一人を気にかけてくださりとても嬉 しかったです。神岡の生ハムの原木や、山形の美味しい食べ物など、今まで触れる機会の少なかっ た美味しい物をたくさん頂けてありがたかったです。石徹白晃治先生は天文も含めて物理の知識 が豊富で驚かされてばかりでした。先生のように自分の興味をあることを追究していきたいと思 います。上島孝太先生は研究会に行くたび他の大学の方々のお話に上がるほど誰からも好かれて いて、その顔の広さに驚かされていました。渡辺寛子先生は神岡の3の方の後にも疲れた顔を見 せずに朗らかだったのが印象的でした。どんな時にも皆さんのことを配慮してくださって、作業 の時に渡辺先生がいると大変楽しかったです。丸藤(寺島)亜寿紗さんは広い視野で全体を見て行 動してらっしゃる姿を尊敬していました。ミニバルーン作業などでいつもシフトメンバーをまと めてくださる姿が心強かったです。細川佳志さんは気さくに話しかけてくださるだけでなく、的 を得たアドバイスをくださることも多くとても頼れる存在でした。暗黒物質の実験についてもご 自身の経験を教えてくださり、方針や考えを整理することができました。

ニュートリノセンターは先輩も同輩も後輩も優秀な方が多く、たくさん頼らせていただきま した。小原脩平さんは非常に計画的に研究や仕事を進めていて、メリハリがある生活を羨ましく 思っていました。何を質問してもすぐに答えてくださる頭の回転の速さに驚くばかりでした。林 田眞悟さんはシフトトレーニングで教えていただきました。非常に後輩想いで、DAQ の仕組みな ど知識のない私にも分かるように説明してくださいました。金木戸屋さんでお店の人とお話しし たのが懐かしいです。蜂谷尊彦さんは初歩的な物理から解析まで数多く質問させていただきまし た。理解するまで何度も説明してくださって、本当に蜂谷さんに足を向けて寝られません。白旗 豊さんには悩み相談を聞いていただいたり、人狼ゲームをしたりと非常に楽しかったです。どん なことも楽しもうとするその柔軟性や器の大きさをぜひ見習っていきたいです。尾崎秀義さんは、 初歩的な質問をしてもそこから更に進んで物理を考えるきっかけとなる回答をいただける印象が ありました。4年生のころから、尾崎さんがみんなを学食に誘ってくれるのを毎日楽しみにしてい ました。卒業された先輩方のお名前は省略しますが、たくさん面倒を見ていただき感謝しており ます。思いつきで竹を買って流し素麺をしたり、毎日朝早く集合して朝ドラを観たりと非常に楽 しかった思い出があります。親しみやすく優しい先輩方の背中を見て育つことができました。同 期の本田佳己君は誰に対しても優しく、私もプログラムが上手くいかない時に何度も助けてもら いました。真面目な顔をして面白いことを言うのでいつもみんなを暖かい気持ちにしてくれまし た。上澤康平君は就職活動や個人的な悩みなどたくさん相談にのってくれて助けられていました。 研究もプライベートも集中するとまっすぐ向かっていく勢いに圧倒されていました。相馬圭吾君 は時間の使い方が上手で、だらだらとすることなく短期集中で取り組んでいました。その技をな んとかして学びたいと思っています。また発想力が豊かで非常に楽しい時間を過ごす事ができま した。日野陽太君は一緒に学生実験の TA をしましたが、学生に丁寧にテキパキと楽しく教えて いてとても心強い存在でした。これからの活躍を期待しています。忙しかったり心が折れそうに なったことも多々ありますが、同期の皆さんの支えのおかげで最後まで進めたと思います。この メンバーで過ごせたのは幸運でした。また後輩の皆さんとも楽しい時間を過ごすことができまし た。太田直樹君はサークル活動も楽しんでいて羨ましかったです。大塚竣太君は誰とでも仲良く 場を明るくしてくれました。大野敦君は学部生の時から委員会・アルバイトなど接点が多かった ですが、とても頼りになる後輩でした。木下達也君は研究が好きだというのが日々伝わってきま した。今後も気持ちを大切にしてください。佐藤拓磨君はいつも穏やかで、ふと見せる笑顔に癒 されていました。竹内敦人君は実験への情熱の強さを感じました。進学等これからも頑張ってく ださい。亀井雄斗君はいつも研究室にいる印象でした。研究会など積極的に参加していてとても

良いと思います。桑田和輝君は親しみやすく、就職活動の件でもお世話になりました。4年生の三 宅春彦君、川田七海君、和田佳樹君、安部清尚君は話す機会が少なかったのが残念ですが、これ から主力メンバーとしての活躍を楽しみにしています。3人は学生実験のTAをしていた時の学生 だったので再会できて嬉しかったです。

また、技術職員の皆様にも助けていただきました。故 高山知明さんからは、OD 作業を通し てチームで働く事や全体を見て行動する事の大切さを教えていただきました。朝早くから坑内で 汗だくになって働きましたが、高山さんが笑顔で「みんなで力を合わせて働くことは楽しいんだ よ」とお話ししてくださったのを今でも鮮明に覚えています。行動するときの優先順位を意識した りチームワークを以前より大切にするようになったのは高山さんのおかげです。中嶋隆さん、根 本憲一さん、鈴木貴志さん、三浦邦子さんにも大変お世話になりました。自分で悩んだ後に皆様 に聞きに行くと一瞬で良いアイディアをいただけて解決する、ということもよくありました。ま た、ちょうど年末に追い込まれていた時に三浦さんから暖かい激励をいただき、精神的に非常に 救われました。本当にタイミングがぴったりだったので、実は心が読めるのでは?と内心思って しまったほどです。

事務職員の遊佐俊昭さん、遠藤由理さん、大塚明美さん、松村吟子さん、白鳥益子さんの支え があったからこそ、快適な大学院生活を送る事ができました。物品の購入や出張申請など分から ないことばかりでお手数おかけしてしまいましたが、優しく教えてくださって本当に嬉しかった です。白鳥さんが施設をピカピカにしてくださったので、毎日爽やかな気持ちになりました。疲 れている時も皆様と挨拶したりお話しすることで随分と気持ちが軽くなりました。

神岡では澤田さん、清水さん、茂角さんにいつも優しくしていただきました。澤田さんは坑 内で困った事があるとすぐに解決してくれ、仕事の素早さと経験の豊富さに助けられてばかりで した。神岡出張の時は清水さん、茂角さんとお話しできるのが毎回楽しみでした。地元のお祭り に呼んでくださったり、貴重な体験をすることができました。

最後になりましたが、大学6年間を明るく励まし合えた友人たち、いつも「おかえり」と迎 えてくれた地元の友人たち、そしてやや放任ながらも温かく見守ってくれた大切な家族にも感謝 しております。物理に興味をもったのは両親が好奇心の芽を育ててくれたからだと思います。皆 さんの支えがあったからこそ前を向いて歩む事ができました。今後は恩を返せるよう精一杯努力 して参りたいと思います。ありがとうございました。