修士論文

ガドリニウム含有液体シンチレータを用いた太陽ニュートリノ検出器の開発

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻

清水 格

平成14年

概要

太陽ニュートリノを観測する実験は、1970 年に Davis らによって始められた。しかし、この観測から得られたニュートリノ捕獲率は理論的に予測された値の $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{4}$ にしかならなかった。以来、太陽ニュートリノを観測する実験は各地でおこなわれているが、いずれも予想を下回るものであった。この原因を説明するものとして、ニュートリノ振動が考えられてきたが、最近の様々な太陽ニュートリノ実験の結果は、いずれもニュートリノ振動の大混合角解 (LMA Large Mixing Angle Solution) を支持している。特に、原子炉ニュートリノを用いた KamLAND 実験では、LMA 解でのみニュートリノ振動が起きることが分かっているが、2002 年 12 月の結果では明かにニュートリノの観測量が予想値を下まわっている。

このような結果から、太陽ニュートリノ問題の解はニュートリノ振動であることはほぼ確実となった。しかしながら、これで太陽ニュートリノのことがすべて分かったわけではない。太陽から発せられるニュートリノの約 91%は、$\mathrm{p + p \rightarrow D + e^- + \nu_e}$ で発生する pp ニュートリノであるが、これを単独で測定した実験はまだない。この測定は、我々にニュートリノ振動といったニュートリノの性質を明らかにしてくれるだけでなく、太陽のエネルギー生成機構を調べることができる点でも重要となる。

ニュートリノ振動パラメータは、KamLAND 実験によって精密に測定されることが期待されているが、統計量が少ないことから混合角に対する感度は小さい。この測定に最も適したニュートリノ源の条件として、強くて誤差の少ないフラックスであることが挙げられる。そこで、混合角決定には約 1%の精度で強度が予測されている pp ニュートリノの測定が有効となる。

また、現在ニュートリノは電子ニュートリノ、ミューニュートリノ、タウニュートリノの 3 世代があると考えられているが、これまでの全てのニュートリノ実験を説明するにはこれだけでは足りず、4 番目のニュートリノ不感 (sterile) ニュートリノの可能性が考えられている。この仮説にはっきりとした結論を出すには、他のエネルギーのニュートリノを測定することが重要で、pp ニュートリノの振動現象を見ることで sterile 発見につながる可能性がある。

これまでの実験は、太陽ニュートリノの中のごく一部であり、理論的な見積り誤差の大きい ^{8}B ニュートリノを主に検出していた。低エネルギー領域での測定の際に最も問題とされるのが、測定器に含まれる U、Th など自然界に存在する放射性不純物や環境放射線からのバックグラウンドである。

そこで、我々は ^{160}Gd のニュートリノ捕獲反応を利用することにした。この方法の利点として

(1) ニュートリノのエネルギーが分かる。

(2) 反応時間が分かる。

(3) 観測可能なニュートリノのエネルギーのしきい値が低い。(244keV)

(4) ニュートリノ捕獲率が大きい。

(5) 3 重同時計測が可能である。

などが挙げられる。エネルギーしきい値が低いため、pp ニュートリノを捕らえることができる。この反応は、荷電カレント反応であるため、ニュートリノのエネルギースペクトルが測定できる。また、3 重同時計測はバックグラウンドは大幅に抑えることを可能にする。以上のことが、$^{160}\mathrm{Gd}$ を利用する主な動機である。

目 次

第 1 章　動機 **1**

1.1　太陽ニュートリノ問題 1

1.2　ニュートリノ振動 4

1.2.1　真空中でのニュートリノ振動 5

1.2.2　物質中でのニュートリノ振動 6

1.2.3　3 成分でのニュートリノ振動 6

1.3　ニュートリノ振動のパラメータ 6

1.3.1　ニュートリノ振動解 6

1.3.2　SNO 10

1.3.3　KamLAND 実験 11

1.4　低エネルギー太陽ニュートリノスペクトル観測の意義 12

1.4.1　2 成分振動パラメータの精密測定 13

1.4.2　標準太陽モデルの検証 13

1.4.3　不感ニュートリノへの振動の検証 15

第 2 章　原子核 ^{160}Gd **18**

2.1　^{160}Gd のニュートリノ捕獲反応 18

2.2　ニュートリノ捕獲率の較正 20

第 3 章　ガドリニウム含有液体シンチレータの開発 **22**

3.1　液体シンチレータ 22

3.1.1　GSO 結晶と液体シンチレータ 22

3.1.2　開発の目標 22

3.1.3　シンチレータカクテル 23

3.2　発光量の測定 26

3.3　長期安定性の確認 30

3.3.1　酸化テスト 30

3.3.2　酸化防止剤 30

3.4　透過率の測定 32

3.5　発光時定数の測定 35

3.6　α クエンチの測定 37

3.7　粒子識別能の測定 39

第 4 章　性能評価 **44**
4.1　シミュレーションの設定 44
4.1.1　装置の設計 44
4.1.2　ニュートリノ信号の発生 44
4.1.3　ニュートリノ信号の分離 48
4.2　バックグラウンドの研究 49
4.2.1　ニュートリノ信号のバックグラウンド 49
4.2.2　バックグラウンドの発生 52

第 5 章　今後の研究課題 **57**

第 6 章　まとめ **59**

付 録 A 発光機構 **61**

付 録 B クエンチの原理 **63**

付 録 C 崩壊系列 **65**

図 目 次

1.1 pp チェイン 2
1.2 CNO サイクル 3
1.3 太陽ニュートリノのエネルギースペクトル 3
1.4 4 つのニュートリノ振動解における ν_e 生存確率 8
1.5 4 つのニュートリノ振動解 (90%,99%C.L.) と SK での精密測定により排除 (90%C.L.) される領域 9
1.6 SNO の CC、NC、ES 反応での測定と SSM で予測される ^{8}B 太陽ニュートリノフラックス (1σ error)。点線は、内側から 68%、95%、99%C.L. で排除される領域 10
1.7 KamLAND 実験で Rate から 95%C.L. で排除される領域と Rate+Shape から 95%C.L. で許容される領域。LMA は 95%C.L. で許容される領域 11
1.8 pp ニュートリノ Gd 実験 (day のみ、Nexp=10000event) で Rate(Nobs/Nexp=0.56) から 95% C.L. で排除される領域 (縦線) と LMA 解の 95%C.L. で許容される領域 (塗りつぶし) 14
1.9 pp ニュートリノ電子散乱実験 (E_{th} = 50keV、day のみ、Nexp=10000event) で Rate(Nobs/Nexp=0.699) から 95%C.L. で排除される領域 (縦線) と LMA 解の 95%C.L. で許容される領域 (塗りつぶし) 14
1.10 太陽ニュートリノ ν_e を地球上で観測したときの振動確率 $P_{\nu_e\to\nu_e}$、$P_{\nu_e\to\nu_\mu}$、$P_{\nu_e\to\nu_s}$、振動パラメータは $(\sin^2 2\theta_{12}, \Delta m^2_{12}) = (0.8561, 7.1\times10^{-5}\mathrm{eV}^2)$、$(\sin^2 2\theta_{14}, \Delta m^2_{14}) = (0.004, 1.0\times10^{-6}\mathrm{eV}^2)$、$\sin^2 2\theta_{24} = 0$。 17

2.1 ^{160}Gd のニュートリノ捕獲反応 18

3.1 界面活性剤の侯補 25
3.2 発光量測定 26
3.3 液体シンチレータの発光の波高分布 27
3.4 Gd 濃度と発光量の関係 28
3.5 吸光光度計 U2000F(HITACHI) 32
3.6 Gd 濃度に対する透過率 32
3.7 Bis-MSB の発光波長 33
3.8 発光時定数の測定 35
3.9 1p.e. 側の TDC と ADC 35
3.10 発光時間分布のフィッティング 36
3.11 α クエンチの測定 38

3.12 Gd(5%) の prompt signal、delayed signal のエネルギー、2 つの signal の時間差 41
3.13 PSD の測定 42
3.14 Gd(5%) のα /β 識別能 (tail charge):(total charge) の 2 次元プロット (initial delay=5nsec) 42
3.15 ratio(tail charge/total charge) の 1 次元ヒストグラム 43

4.1 シミュレーションで仮定した実験装置 45
4.2 pp、^{7}Be ニュートリノ反応のエネルギースペクトル 46
4.3 pp、^{7}Be ニュートリノイベント 47
4.4 pp ニュートリノ信号の 2signal のフィット 48
4.5 ^{152}Gd の崩壊図 49
4.6 ^{235}U の崩壊図 51
4.7 ^{152}Gd から発生するα 粒子の信号の 2signal のフィット 52
4.8 第 1 信号と第 2 信号の p.e. 数の 2 次元プロット 53
4.9 第 2 信号の p.e. 数のヒストグラム 54
4.10 第 1、2 信号の時間差のヒストグラム 55
4.11 時間差 cut の位置を変えたときの pp、バックグラウンドの検出効率の変化 56

表 目 次

1.1 太陽ニュートリノ実験の結果。数値の誤差は順に、統計誤差、系統誤差を示す。SNO の CC、NC、ES はそれぞれ CC 反応、NC 反応、電子散乱反応。 4
1.2 将来の pp,^{7}Be ニュートリノ実験 12

2.1 ^{176}Yb、^{160}Gd のニュートリノ捕獲率 19
2.2 励起状態の準位と核行列要素 20

3.1 開発の目標 23
3.2 Gd 化合物の溶解度 24
3.3 界面活性剤の種類 24
3.4 45 ° C 恒温槽中での酸化テスト 30
3.5 45 ° C 恒温槽中での BHT による長期安定性のテスト 31
3.6 Gd 濃度と減衰長の関係 34
3.7 α クエンチの測定 38

5.1 $Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ と $Gd(EH)_3$ の価格の比較 (少量購入時定価) 58

C.1 ^{238}U 系列 67
C.2 ^{232}Th 系列 68

第1章　動機

1.1　太陽ニュートリノ問題

太陽はその主成分である水素を原料にして核融合反応が起こり、同時にニュートリノを放出している。反応は中心付近のみで起こり、図 1.1、1.2 のような pp チェインと CNO サイクルの 2 系統がある。それらをまとめると

$$4\mathrm{p} \rightarrow \mathrm{He} + 2e^{+} + 2\nu_e + 26\mathrm{MeV} \tag{1.1}$$

となる。この式から 26MeV のエネルギー放出に対し、2 つの電子ニュートリノの放出があることが分かる。地球に届くエネルギーは $0.86 \times 10^{12}\mathrm{MeV/cm^2/s}$ であることから、地球でのニュートリノフラックスが $6.6 \times 10^{10}\nu_e/\mathrm{cm^2/s}$ であると計算される。ニュートリノは素粒子の標準理論では、物質と弱い相互作用しかしないので、ニュートリノの発生源である太陽内部を直接観測することができる。これは、星の進化の理論に重要な情報を与えるし、またニュートリノの性質を調べる上でも重要となる。太陽ニュートリノがどのようなスペクトルをしているかは、Bahcall らによる標準太陽モデル (Standard Solar Model SSM) によって理論的に計算されている [1]。(図 1.3)

例えば、pp ニュートリノは低エネルギー ($E_{\nu_e} < 420\mathrm{keV}$ の連続スペクトル) であるが、地球でのフラックスは最も大きく、理論的な不定性も小さい。($\pm 1\%$)

$$\mathrm{p} + \mathrm{p} \rightarrow \mathrm{D} + e^{+} + \nu_e \tag{1.2}$$

また ^{7}Be ニュートリノは単色エネルギーで ($E_{\nu_e} = 861\mathrm{keV}(80.7\%), 383\mathrm{keV}(10.3\%)$) で、地球でのフラックスは大きく、理論的な不定性も比較的小さい。($\pm 10\%$)

$$^7\mathrm{Be} + e^{-} \rightarrow ^7\mathrm{Li} + \nu_e \tag{1.3}$$

このほかに、^{8}B, pep などがあるがどれもフラックスが小さく、理論的な不定性も大きい。

この太陽ニュートリノを観測する実験は、1968 年から Davis らによって始められた [2]。その方法は、130ton の ^{37}Cl を使って

$$\nu_e(E_{\nu_e} > 814\mathrm{keV}) + ^{37}\mathrm{Cl} \rightarrow e^{-} + ^{37}\mathrm{Ar} \tag{1.4}$$

のニュートリノ捕獲反応を用いたもので、一定期間後に ^{37}Ar の数を数えることによってなされた。標準太陽モデルによるニュートリノフラックスからの計算では、この反応への寄与は ^{8}B,^{7} Be, pep ニュートリノがそれぞれ $77\%, 14\%, 5\%$ で、捕獲率は

$$\phi_{SSM} = 7.6^{+1.3}_{-1.1} \quad \mathrm{SNU} \tag{1.5}$$

$$(1\mathrm{SNU} = 10^{-36}\mathrm{capture/atom/sec})$$

との理論的予測が得られている [1]。しかし、実験で得られた値は

$$\phi_{obs} = 2.56 \pm 0.16 \pm 0.16 \quad \mathrm{SNU} \tag{1.6}$$

と理論的に予測されたものの 1/3 程度しかないことが分かった [3]。この理論との食い違いが、太陽ニュートリノ問題である。

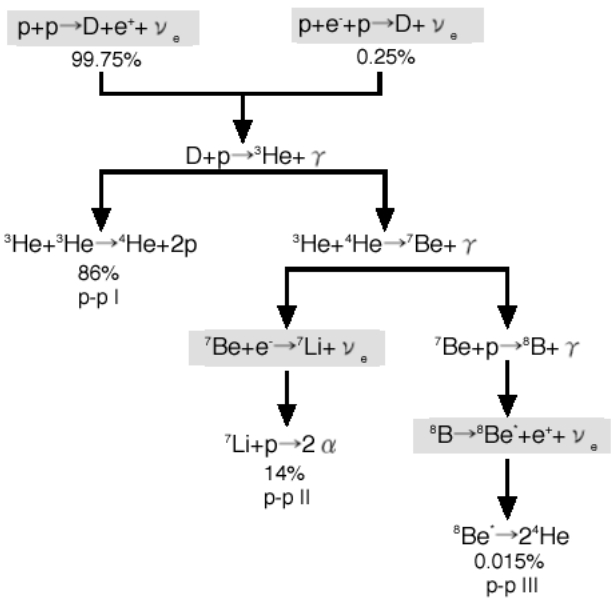


図 1.1: pp チェイン

Davis らの実験のエネルギー閾値は 814keV であったので、感度があるのは主に ^8B ニュートリノであった。1983 年から始まったカミオカンデ実験 [7] は、

$$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^- \tag{1.7}$$

の電子散乱により放出された電子が水中を走る際に放出するリング状のチェレンコフ光を観測するものであった。このため、ニュートリノの来る方向が分かるのでニュートリノが太陽から来ていることが確認された。この実験も予測値よりも低い値 (約 1/2) となったことで、太陽ニュートリノ問題が再確認された。その後、pp,^{7}Be にも感度がある実験が GALLEX[4]、GNO[5]、及び SAGE[6] 研究グループによって行われた。これらの実験は、^{71}Ga を用い

$$\nu_e(E_{\nu_e} > 233\mathrm{keV}) + ^{71}\mathrm{Ga} \rightarrow e^- + ^{71}\mathrm{Ge} \tag{1.8}$$

の反応によって作られた、^{71}Ge の数を数えることで初めて pp ニュートリノの観測が可能となった。また、この実験でも、標準太陽モデルの予測よりも低い値を示した。

現在までの太陽ニュートリノ実験の結果を表 1.1 にまとめた。唯一、SNO の NC 反応の観測値のみが理論値とほぼ一致しているが、この理由は 1.3 節で明らかになる。

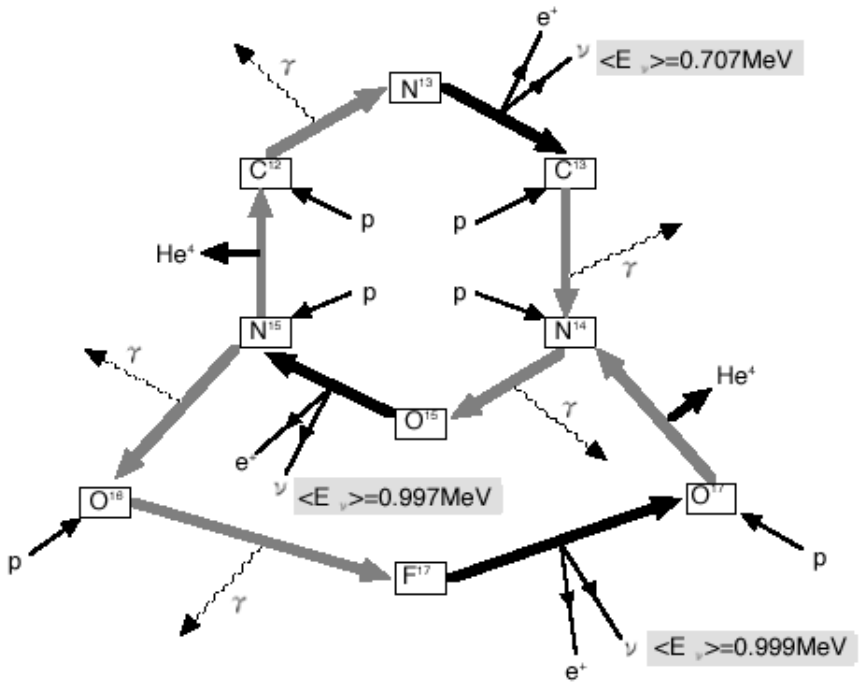


図 1.2: CNO サイクル

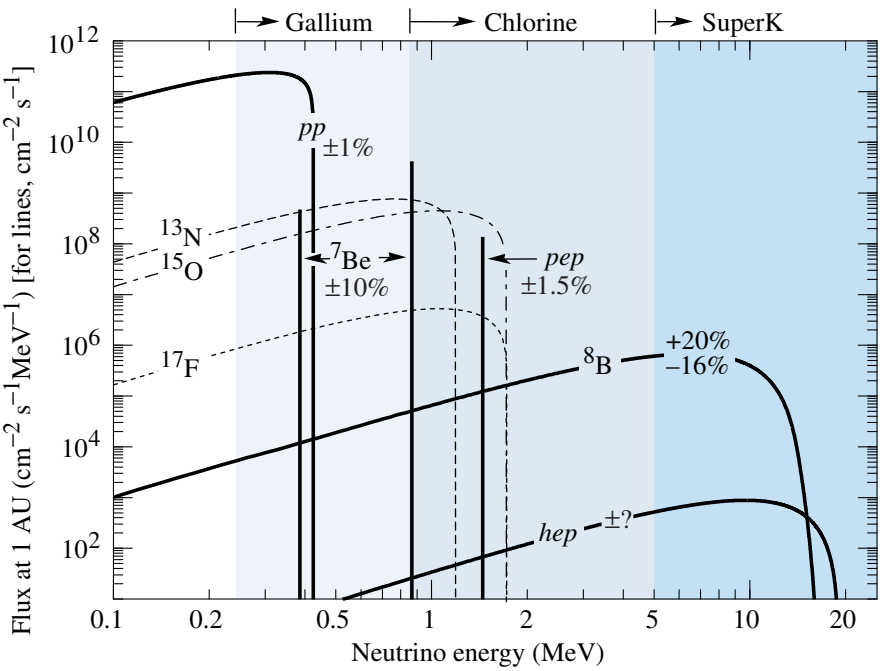


図 1.3: 太陽ニュートリノのエネルギースペクトル

実験	観測値	理論値 (SSM[1])	観測値/理論値
Homestake[3]			
$^{37}\mathrm{Cl} \rightarrow ^{37}\mathrm{Ar}$(SNU)	$2.56 \pm 0.16 \pm 0.16$	$7.6^{+1.3}_{-1.1}$	0.34 ± 0.06
GALLEX[4]			
$^{71}\mathrm{Ga} \rightarrow ^{71}\mathrm{Ge}$(SNU)	$77.5 \pm 0.62^{+4.3}_{-4.7}$	128^{+9}_{-7}	0.61 ± 0.07
GNO[5]			
$^{71}\mathrm{Ga} \rightarrow ^{71}\mathrm{Ge}$(SNU)	$65.8^{+10.2+3.4}_{-9.6-3.6}$	128^{+9}_{-7}	0.51 ± 0.09
SAGE[6]			
$^{71}\mathrm{Ga} \rightarrow ^{71}\mathrm{Ge}$(SNU)	$67.2^{+7.2+3.5}_{-7.0-3.0}$	128^{+9}_{-7}	0.53 ± 0.07
Kamiokande[7]			
$^{8}\mathrm{B}\nu\mathrm{flux}(10^6\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1})$	$2.80 \pm 0.19 \pm 0.33$	$5.05(1.00^{+0.20}_{-0.16})$	0.55 ± 0.13
Super-Kamiokande[8]			
$^{8}\mathrm{B}\nu\mathrm{flux}(10^6\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1})$	$2.32 \pm 0.03^{+0.08}_{-0.07}$	$5.05(1.00^{+0.20}_{-0.16})$	0.46 ± 0.09
SNO[9]			
CC			
$^{8}\mathrm{B}\nu\mathrm{flux}(10^6\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1})$	$1.76^{+0.06}_{-0.05\pm0.09}$	$5.05(1.00^{+0.20}_{-0.16})$	0.35 ± 0.07
NC			
$^{8}\mathrm{B}\nu\mathrm{flux}(10^6\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1})$	$5.09^{+0.44+0.46}_{-0.43-0.43}$	$5.05(1.00^{+0.20}_{-0.16})$	1.01 ± 0.24
ES			
$^{8}\mathrm{B}\nu\mathrm{flux}(10^6\mathrm{cm}^{-2}\mathrm{s}^{-1})$	$2.39^{+0.24}_{-0.23\pm0.12}$	$5.05(1.00^{+0.20}_{-0.16})$	0.47 ± 0.11

表 1.1: 太陽ニュートリノ実験の結果。数値の誤差は順に、統計誤差、系統誤差を示す。SNO の CC、NC、ES はそれぞれ CC 反応、NC 反応、電子散乱反応。

1.2 ニュートリノ振動

素粒子物理学では、ニュートリノは三つの種類があることが分かっている。太陽で発生するニュートリノはすべて電子ニュートリノ (ν_e) で、ほかにミューニュートリノ (ν_μ)、タウニュートリノ (ν_τ) がある。これらのニュートリノの相互作用の固有状態で、この状態のことをフレーバーと呼ぶ。ニュートリノが質量の固有状態で表されるとしたとき、ニュートリノの伝播中に異なるフレーバーに移ることができる [10]。この現象をニュートリノ振動といい、ニュートリノに質量があり、かつ「質量の固有状態」と「相互作用の固有状態」の間に混合がある場合に起こる。このニュートリノ振動が、太陽ニュートリノ問題を説明する有力な理論であると考えられた。

1.2.1 真空中でのニュートリノ振動

弱い相互作用の固有状態を $\nu_\alpha(\alpha = e, \mu, \tau)$、質量の固有状態を ν_i、真空中の混合角を θ と置く。これらの混合は、小林・益川行列 (CKM matrix) に相当する混合行列で書かれ

$$|\nu_\alpha >= V_{\alpha i}|\nu_i > \quad (\alpha = e, \mu, \tau \quad , i = 1, 2, 3) \tag{1.9}$$

のように表される。シュレディンガー方程式より、質量固有状態 ν_i の時間発展は

$$i\frac{d}{dt}|\nu_i >= E_i|\nu_i > \tag{1.10}$$

となる。ここで E_i は ν_i のエネルギーとする。すると、波動関数は

$$|\nu_i(t) >= e^{-iE_i t}|\nu_i(0) > \tag{1.11}$$

となる。弱い相互作用の固有状態では、式 (1.9)∼(1.11) を使い

$$i\frac{d}{dt}|\nu_\alpha >= V_{\alpha i}E_i V^\dagger_{i\alpha}|\nu_\alpha > \tag{1.12}$$

$$|\nu_\alpha(t) >= V_{\alpha i}e^{-iE_i t}V^\dagger_{i\alpha}|\nu_\alpha(0) > \tag{1.13}$$

のように表される。もし ν_α が t=0 に生成されたとすると、時刻 t において ν_α が観測される確率は

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \to \nu_\alpha) &= |<\nu_\alpha(0)|\nu_\alpha(t)>|^2 & (1.14)\\ &= |<\nu_\alpha(0)|V_{\alpha i}e^{-iE_i t}V^\dagger_{i\alpha}|\nu_\alpha(0)>|^2 & (1.15)\end{aligned}$$

簡単にするために、2 フレーバーだけを考えて

$$V = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \tag{1.16}$$

これらより、ν_e の生存確率、振動確率がそれぞれ求まり

$$\begin{aligned} P_{\nu_e\to\nu_e} &= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 t}{4p}\right) & (1.17)\\ &= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{1.27\Delta m^2[\mathrm{eV}^2]\mathrm{L[m]}}{E[\mathrm{MeV}]}\right) & (1.18)\\ P_{\nu_e\to\nu_x} &= \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 t}{4p}\right) & (1.19)\\ &= \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{1.27\Delta m^2[\mathrm{eV}^2]\mathrm{L[m]}}{E[\mathrm{MeV}]}\right) & (1.20)\end{aligned}$$

となる。ここで $\Delta m^2 = |m_2^2 - m_1^2|$、L はニュートリノが伝播した長さとする。

1.2.2　物質中でのニュートリノ振動

ニュートリノが物質中を伝播する場合は、そのポテンシャルエネルギーが真空中のものとは異なる。そのため、ニュートリノ振動も真空中とは異なってくる。この効果を MSW 効果といい、Wolfenstein により提案され [11]、その理論は Mikheiev と Smirnov により太陽内でのニュートリノ振動にも拡張された [12]。

特に電子ニュートリノのポテンシャルはその荷電カレントによるニュートリノ・電子散乱のため、他のフレーバーのニュートリノと $V_e = \sqrt{2} G_F N_e$ だけ異なる。ここで、G_F は Fermi 結合定数、N_e は物質中の電子数密度である。このポテンシャルの効果を式 (1.12) に加えて、物質中の混合角 θ_m を

$$V_m = \begin{pmatrix} \cos\theta_m & \sin\theta_m \\ -\sin\theta_m & \cos\theta_m \end{pmatrix} \tag{1.21}$$

のように定義すると θ_m は、真空中の振動角 θ と次のような関係が成り立つ。

$$\tan 2\theta_m = \frac{\frac{\Delta m^2}{2p} \sin 2\theta}{\frac{\Delta m^2}{2p} \cos 2\theta - V_e} \tag{1.22}$$

この式は、真空中の混合角が小さくても、もし共鳴条件 $V_e \sim \frac{\Delta m^2}{2p} \cos 2\theta$ が満たされれば混合は大きくなり、ニュートリノ振動が大きな振動となり得ることを示している。

1.2.3　3 成分でのニュートリノ振動

3 世代のニュートリノを考えた場合、電子ニュートリノの生存確率は混合行列の 13 成分の寄与を考えなければならない。3 成分での混合行列 V は、次のように表される。

$$\begin{aligned} V &= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} && (1.23) \\ &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & c_{23} & s_{23} \\ 0 & -s_{23} & c_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{13} & 0 & s_{13}e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -s_{13}e^{-i\delta} & 0 & c_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{12} & s_{12} & 0 \\ -s_{12} & c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} && (1.24) \\ &\equiv V_{23} V_{13} V_{12} && (1.25) \end{aligned}$$

ただし、$s_{ij} \equiv \sin\theta_{ij}$、$c_{ij} \equiv \cos\theta_{ij}$、$\delta = 0$ で CP 保存則が成り立つ。原子炉ニュートリノ $\bar{\nu}_e$ を用いた CHOOZ 実験では、$\sin^2 2\theta_{13} < 0.15$ という結果が得られた [13]。このため、通常 ν_e の振動は θ_{13} を無視した 2 成分でのニュートリノ振動で表す場合が多い。

1.3　ニュートリノ振動のパラメータ

1.3.1　ニュートリノ振動解

ニュートリノ振動解には、大きく分けて物質振動解、真空振動解の 2 つがある。

物質振動解は、太陽内で発生した ν_e が MSW 効果により別のニュートリノに変化するとされる振動解である。物質振動が起こるためには、共鳴を起こす密度が太陽中心密度 ($\sim 100\mathrm{g/cm}^3$) よりも小さくなければならない (共鳴条件)。また、共鳴を起こすためにはニュートリノのポテンシャルエネルギーの変化が十分に緩やかでなければならない (断熱条件)。これらの条件を満たす場合、小さな混合角 θ で大きな混合を起こすことが可能となる。これまでの太陽ニュートリノ実験が観測した強度から許される物質振動解内のニュートリノ振動パラメータの領域は、LMA(Large Mixing Angle) 解、SMA(Small Mixing Angle) 解、Low(Low Δm^2) 解の 3 つである。

真空振動解は、物質振動なしで太陽ニュートリノ問題を説明するものである。$\sin^2 2\theta \sim 1$,$\Delta m^2 \sim 10^{-10}(\mathrm{eV}^2)$ とすれば、Homestake の実験を再現できる (Just So 解)。図 1.4 に太陽の中心部で発生した ν_e が、地球表面に届いたときの生存確率を 4 つのニュートリノ振動解ごとに示す。SMA 解では、物質振動の効果により小さな混合角でも大きな混合が起きていることが分かる。ただし SK の精密測定により、SMA 解、Just-So 解、LMA の下半分を 90%の信頼度で排除されている [14]。(図 1.5) よって、残された領域は LMA 解の上の部分と Low 解の一部となる。

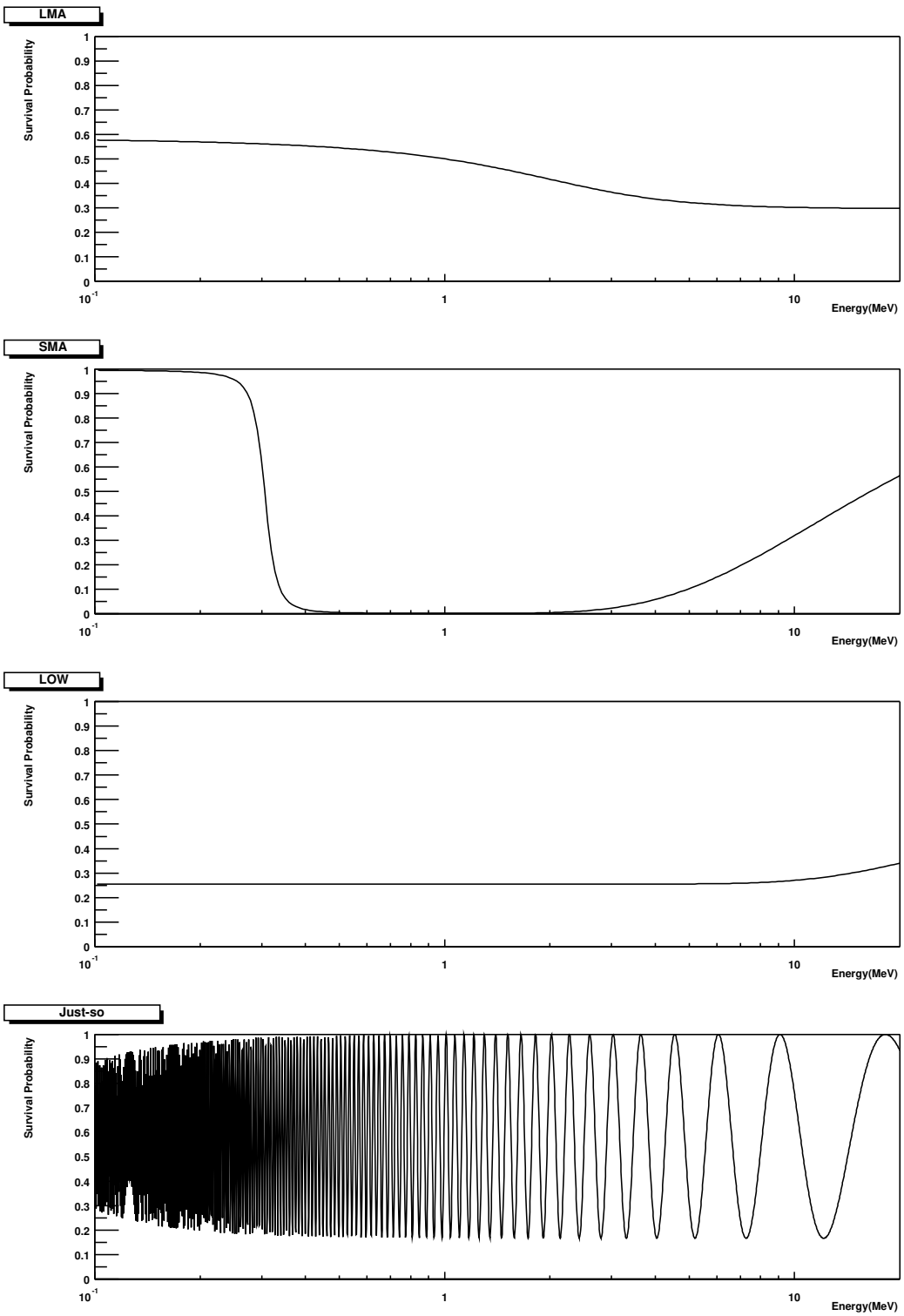


図 1.4: 4 つのニュートリノ振動解における ν_e 生存確率

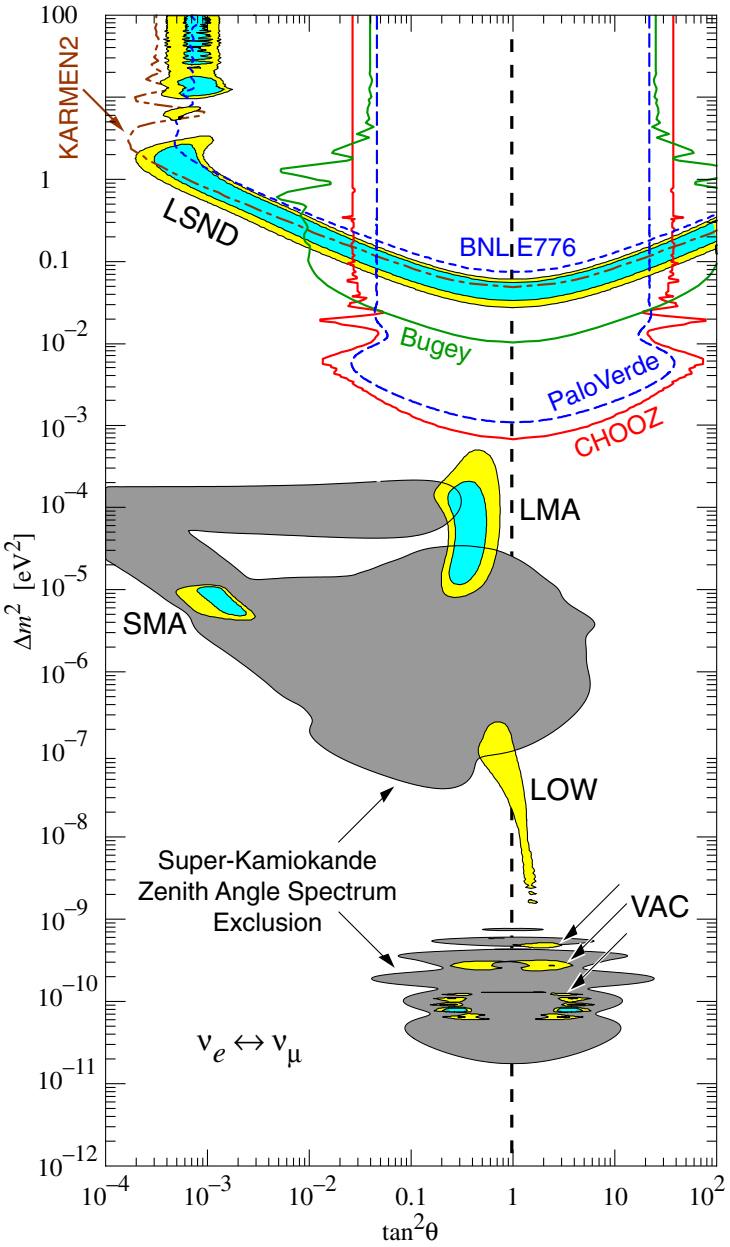


図 1.5: 4 つのニュートリノ振動解 (90%,99%C.L.) とSK での精密測定により排除 (90%C.L.) される領域

1.3.2 SNO

SNO(Subdury Neutrino Observatory) 実験装置は、Creighton 鉱山の地下約 2000m にある。この実験では、1,000 トンの重水 (D_2O) を用いて、次の 3 つの反応によって ^{8}B 太陽ニュートリノを検出する。

$$\nu_e + \mathrm{D} \rightarrow \mathrm{p} + \mathrm{p} + \mathrm{e}^-(\mathrm{CC}) \tag{1.26}$$

$$\nu_x + \mathrm{D} \rightarrow \mathrm{p} + \mathrm{n} + \nu_x(\mathrm{NC}) \tag{1.27}$$

$$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^-(\mathrm{ES}) \tag{1.28}$$

荷電カレント (CC) 反応は電子ニュートリノのみに感度があるが、中性カレント (NC) 反応は全ての有感ニュートリノ ($x = e, \mu, \tau$) に感度がある。

2002 年 4 月、SNO では NC 反応を用いて、太陽ニュートリノの減少がニュートリノ振動によるものであることを示した [9]。この結果を、図 1.6 に示す。

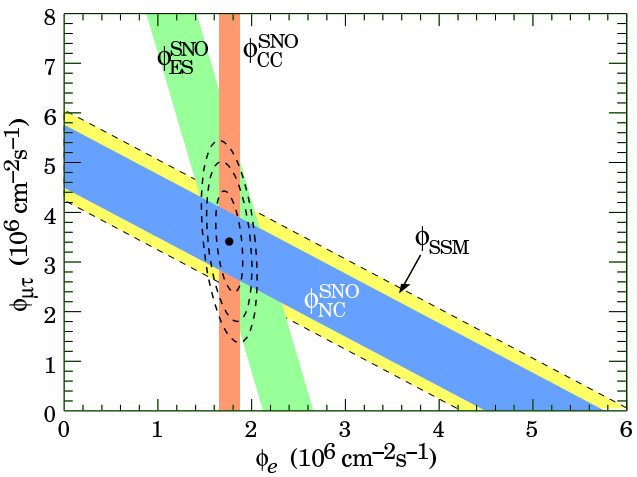


図 1.6: SNO の CC、NC、ES 反応での測定と SSM で予測される ^{8}B 太陽ニュートリノフラックス (1σ error)。点線は、内側から 68%、95%、99%C.L. で排除される領域

電子散乱 (ES) は、ν_e に加え $\nu_{\mu,\tau}$ にも感度があるため、CC と NC の中間にある。3 つの帯は、1 点で交わり ν_e、$\nu_{\mu,\tau}$ それぞれのフラックスを決定する。また、全ニュートリノに感度がある NC の結果は、SSM の予想と良く一致している。NC は $\nu_e \leftrightarrow \nu_{\mu,\tau}$ の振動によって変化しない全フラックスを測定するので、SSM との直接の比較ができる。この結果により、^{8}B に関して SSM は間違っておらず、ν_e が予想値より少なくなるという太陽ニュートリノ問題がニュートリノ振動によって引き起こされたことが、はじめて証明された。

1.3.3 KamLAND 実験

太陽ニュートリノの数が予想値よりも少ないという太陽ニュートリノ問題は、ニュートリノ振動という現象によって説明できる。しかし、太陽ニュートリノは非常に遠方から飛来するため、エネルギーや距離の変化に対して、式 (1.20) の 2 つめの sin の位相の変化が激しくなる。このため振動は平均化され、Δm^2 による振動の変化は見ることができない。よってニュートリノ振動を感度良く測定するには、$\Delta m^2 \sim \frac{E}{L}$ になるような実験を必要とする。

KamLAND(Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector) 実験装置は、岐阜県神岡鉱山の地下約 1000m にある。KamLAND は、1,000 トン液体シンチレータを用いて逆β 崩壊 $\bar{\nu}_e + \mathrm{p} \rightarrow \mathrm{e}^+ + \mathrm{n}$ を用いて原子炉反ニュートリノを検出する。原子炉ニュートリノは、燃料となるウラン、プルトニウムなどから発生する電子反ニュートリノ $\bar{\nu}_e$ として原子炉から放出される。ニュートリノのフラックスは原子炉内の燃料の構成比によって時間変化するが、原子炉の総熱出力などから日々ごとに数%の精度で予測可能である。

2002 年 12 月、KamLAND では反電子ニュートリノのニュートリノ振動を高い精度で検証することに成功した [15]。KamLAND では、約 180km 離れた原子炉からの低エネルギー (1.8MeV $\sim$ 10MeV) のニュートリノを測定するため、$\Delta m^2 (\sim 10^{-5}\mathrm{eV}^2)$ までの感度を持つ。ただし、$\bar{\nu}$ と ν で同じ振動パラメータを持つには、CPT 不変の仮定が必要である。145.1 日の測定で期待されるニュートリノの数に対する観測されたニュートリノの比は、$0.611 \pm 0.085(\mathrm{stat}) \pm 0.041(\mathrm{syst}) (E_{\bar{\nu}_e} > 3.4\mathrm{MeV})$ であり、CPT 不変の仮定のもと 95%C.L. で LMA 解以外のパラメータ領域は排除される (図 1.7)。

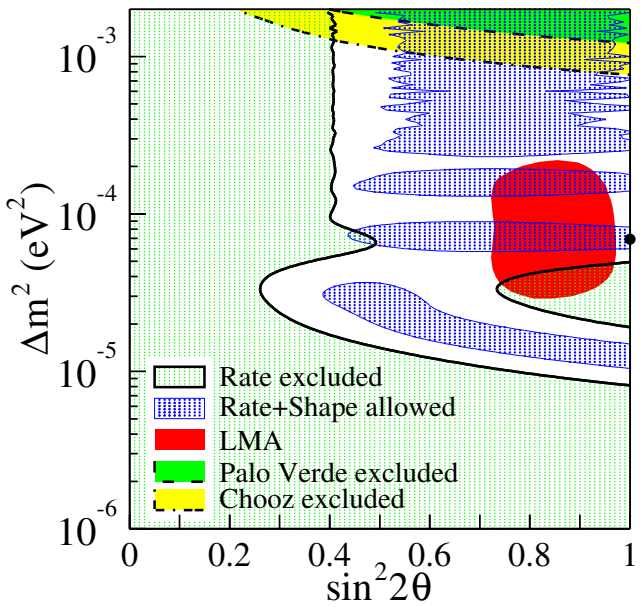


図 1.7: KamLAND 実験で Rate から 95%C.L. で排除される領域と Rate+Shape から 95%C.L. で許容される領域。LMA は 95%C.L. で許容される領域

また、さらにニュートリノのエネルギースペクトルの形を解析することにより、95%C.L. で許容領域が求まる。LMA 解で許される領域は 2 つあることが分かる。今後、統計を増加させ、さらに系統誤差を減少させることができれば、高精度のパラメータ測定が可能となることが期待される。

1.4 低エネルギー太陽ニュートリノスペクトル観測の意義

前節で述べたように、太陽ニュートリノ問題はニュートリノ振動によって説明できる。KamLAND 実験では、LMA 解に感度があり $\bar{\nu}_e \to \bar{\nu}_x$ の振動パラメータを精度良く測定することができる。しかし、Δm^2 には高い感度を持つものの、混合角に対しては統計が少ないこと (1 日約 1 イベント) により感度が良くない。SNO 実験では、^{8}B ニュートリノの NC 反応と CC 反応での測定で振動量を SSM によらず測定できるが、^{8}B ニュートリノは太陽から発生するニュートリノの 0.01%でしかないので統計が十分ではない。そのため、フラックスが大きく理論的誤差の小さい pp、^{7}Be ニュートリノを観測することは重要である。GALLEX、GNO、及び SAGE では、これら低エネルギーニュートリノを観測できるが全太陽ニュートリノの積分量しか測定できない。このため pp、^{7}Be ニュートリノをスペクトルで分離して観測できる検出器が必要となる。現在、世界中で pp、^{7}Be ニュートリノの観測をめざした R & D が進められている。表 1.2 にそれをまとめた [16]。

実験	反応	概要
LENS	$\nu_e{}^{176}\mathrm{Yb} \to e^{-}{}^{176}\mathrm{Lu}\gamma$	20 トン含 Yb 液体シンチレータ
MOON	$\nu_e{}^{100}\mathrm{Mo} \to e^{-}{}^{100}\mathrm{Tc}(\to \beta)$	3.3 トン ^{100}Mo フォイル+プラスチックシンチレータ
BOREXINO	$\nu e^- \to \nu e^-$	300 トン液体シンチレータ (^{7}Be のみ)
KamLAND	$\nu e^- \to \nu e^-$	1,000 トン液体シンチレータ (^{7}Be のみ)
CLEAN	$\nu e^- \to \nu e^-$	10 トン液体 He or Ne
HERON	$\nu e^- \to \nu e^-$	10 トン超流動 He
XMASS	$\nu e^- \to \nu e^-$	10 トン液体 Xe シンチレータ

表 1.2: 将来の pp,^{7}Be ニュートリノ実験

実験は大きく分けて、CC 反応のみを用いる方法と電子散乱を用いる方法とがある。電子散乱では NC 反応を含むので、ν_e に加えて $\nu_{\mu,\tau}$ からの寄与も加わる。よって、両方の測定方法は相補的であり、両方を測ることで ν_e、$\nu_{\mu,\tau}$ のそれぞれの強度が分かる。また、全ニュートリノの和 $\nu_e + \nu_{\mu,\tau}$ と SSM を比較することにより、不感ニュートリノ (sterile)ν_s の存在を検証することができる。全ニュートリノ量を求めて SSM を検証することは天体物理学の見地からも重要であり、星の内部構造を知る手がかりとなる。

1.4.1 2 成分振動パラメータの精密測定

これまでの太陽ニュートリノ実験と KamLAND 実験の結果を総合すると、LMA 解の 2 領域 (図 1.7) に限定される。KamLAND が Δm^2 に非常に良い感度を持っているのに対し、混合角に対する制限は主に Ga,SNO,SK の太陽ニュートリノ実験からのものである。この混合角に対する制限をさらに小さくするためには、フラックスが大きく、理論的不確定性の小さい pp ニュートリノのみの測定をすることが必要となる。pp ニュートリノを用いる利点は、LMA 解では低エネルギー領域において Δm^2 にほとんど感度を持たないため、イベントレートのみで混合角が決められることである。許容領域は KamLAND のものと垂直に交わることになる。pp ニュートリノ実験に加え、KamLAND が Δm^2 を精密に測定できることから、2 成分の振動パラメータはこれで決定できることになる。

CC 反応を用いた実験 (ここでは Gd) と電子散乱を用いた実験で、振動なしで 10000 イベントの統計量のときの排除されるパラメータ領域を図 1.8、1.9 に示す。ただし、best-fit は $(\sin^2 2\theta, \Delta m^2) = (0.8561, 7.1 \times 10^{-5}\mathrm{eV}^2)$ に設定してある。同じ統計量では、$\nu_{\mu,\tau}$ の寄与がない CC 反応を用いた実験のほうが、高い感度を持つ。しかし、混合角決定に対しては統計量が必要となるので、反応数の多い電子散乱を用いた実験のほうが実用的であるかもしれない。

1.4.2 標準太陽モデルの検証

ニュートリノフラックスは標準太陽モデルによって計算されている。その過程は太陽の明るさ、大きさ、質量、年齢を境界条件として核反応率を求めている。これには、原子核の反応断面積や、太陽表面での物質存在比などの情報を必要とし、不確定性も大きい。特に、^{8}B ニュートリノは原子核反応断面積の不確定性が大きく (1σ,+20%,-16%)、振動パラメータの決定にも問題とされて来たが、CC 反応と NC 反応を測定した結果に加え、KamLAND の結果を考慮すると 6%の精度で標準太陽モデルの予想するフラックスが正しいことが確認された。

このように、振動パラメータが精度良く分かってはじめて、太陽ニュートリノのフラックスが正確に求められる。現在、^{7}Be ニュートリノの SSM の誤差は 10%なのでパラメータによる誤差 2%に比べて大きいため、^{7}Be ニュートリノを測定すればフラックスの誤差を小さくできる。また、pp、^{7}Be ニュートリノはこれまでエネルギースペクトルで分離して測定した実験はなく、これらのニュートリノを見ること自体が重要な意味を持つ。特に、pp 反応によって発せられる pp ニュートリノは、太陽から発生するニュートリノの 91%を占めているので、この反応率を実際に測定することは標準太陽モデルの検証に最も有効である。

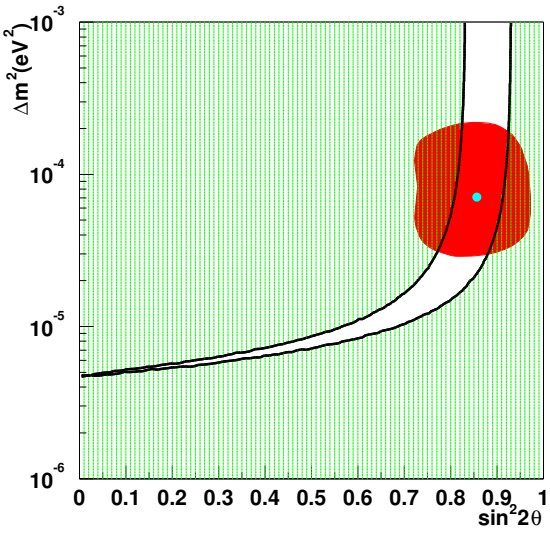


図 1.8: pp ニュートリノ Gd 実験 (day のみ、Nexp=10000event) で Rate(Nobs/Nexp=0.56) から 95% C.L. で排除される領域 (縦線) と LMA 解の 95%C.L. で許容される領域 (塗りつぶし)

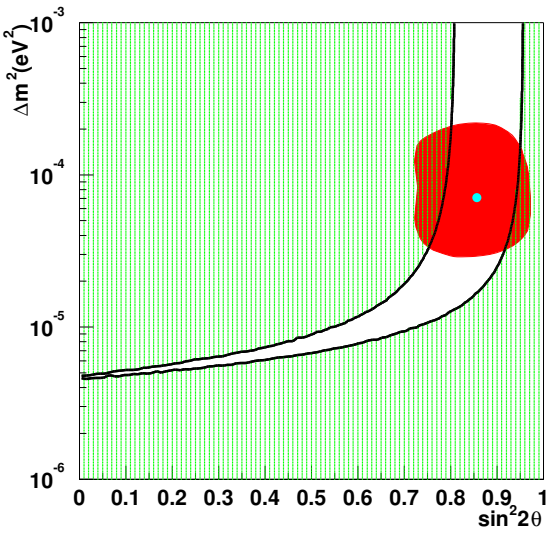


図 1.9: pp ニュートリノ電子散乱実験 (E_{th} = 50keV、day のみ、Nexp=10000event) で Rate(Nobs/Nexp=0.699) から 95%C.L. で排除される領域 (縦線) と LMA 解の 95%C.L. で許容される領域 (塗りつぶし)

1.4.3 不感ニュートリノへの振動の検証

・LSND 実験

1998 年に、スーパーカミオカンデ (SK) は宇宙線が大気で生成するニュートリノ (大気ニュートリノ) の観測を通じて 5σ 以上の信頼度でニュートリノ振動を検出し、ニュートリノに質量があることが証明された [17]。この結果から求められた $\bar{\nu}_\mu$ から他のニュートリノへの振動パラメータは

$$\sin^2 2\theta \sim 1.0 \tag{1.29}$$

$$\Delta m^2 \sim 2.2 \times 10^{-3}\mathrm{eV}^2 \tag{1.30}$$

程度であった。この質量差は、太陽ニュートリノ実験で測定される ν_e の振動解 $\Delta m^2 \sim 7.1 \times 10^{-4}\mathrm{eV}^2$ とは別のものであることが分かる。標準理論ではニュートリノは 3 世代としていて、実際 CERN の LEP (電子陽電子衝突型加速器) によれば ニュートリノの世代数は 2.98 程度という結果である [18]。よって、3 つの異なった質量を持ったニュートリノは、大気ニュートリノ、太陽ニュートリノの振動現象を説明できる。

ところが、2001 年の LSND 実験によるの $\bar{\nu}_\mu \to \bar{\nu}_e$ 振動の測定結果は、3σ 以上の信頼度で振動を検出し、その振動パラメータは

$$\sin^2 2\theta \sim 0.003 \tag{1.31}$$

$$\Delta m^2 \sim 1.2\mathrm{eV}^2 \tag{1.32}$$

程度であった [19]。

もし、ニュートリノが 3 種類の場合、それらの質量差は明らかに次の式を満たす。

$$\Delta m^2_{32} + \Delta m^2_{21} + \Delta m^2_{13} = 0 \tag{1.33}$$

よって、3 種類のニュートリノでは 3 つの違うオーダーの質量差は説明できないため、4 番目のニュートリノが必要となる。

LEP の結果から、ニュートリノの種類に対する制限は 3 種類であるので、4 番目のニュートリノは弱い相互作用のしないニュートリノであると考えられた。これが、不感 (sterile) ニュートリノである。この sterile ニュートリノの存在の可能性によって、超対称性の破れから生じる質量 0 のフェルミオン (goldstino)[20]、超弦理論や M 理論におけるコンパクト化で現れるフェルミオン (modulino)[21]、重力だけが存在するバルク (bulk) と呼ばれる余剰空間から生じる右巻きニュートリノ [22] など sterile ニュートリノを説明する数多くの理論が考え出された。

LSND の結果は 5σ 信頼度ではなく、KARMEN 実験で一部のパラメータ領域を除いて否定的な結果が得られてはいる [23]。しかし、この LSND の結果は sterile 探策への大きな動機づけとなった。2002 年 8 月からデータを取り始めた MiniBooNE 実験では LSND の結果が正しいのかを確かめることができる [24]。

LSND の結果を説明するものとして、次のようなモデルがある。

Δm^2_{14} が MSW 効果を起こす領域より十分に大きい場合、太陽ニュートリノ実験から求まるパラメータに与える影響は無視できる。このとき、ν_4 における ν_e の混入は無視でき

て、4 成分表示での混合は次のように表される。

$$\nu_1 = \cos\theta_{12}(c_{13}\nu_e - s_{13}\nu'_a) - \sin\theta_{12}\nu_x \quad (1.34)$$
$$\nu_2 = \sin\theta_{12}(c_{13}\nu_e - s_{13}\nu'_a) + \cos\theta_{12}\nu_x \quad (1.35)$$
$$\nu_3 = c_{13}\nu'_a + s_{13}\nu_e \quad (1.36)$$
$$\nu_4 = \nu'_x \quad (1.37)$$

ここで ν'_x は $\nu_x = \sqrt{1-\eta}\nu_a + \sqrt{\eta}\nu_s$ に直交する成分である。一般的な場合と異なり、ν_e と ν'_a は ν_4 に入っておらず、ν_a と ν_s は ν_3 に入っていない。この場合、Δm_{12} が太陽ニュートリノ、Δm_{23} が大気ニュートリノ、$\Delta m_{i4}(i = 1, 2, 3)$ が LSND におけるわずかな ν_e の出現を説明する。

・太陽ニュートリノ実験と矛盾しない sterile ニュートリノへの振動モデル

SNO による ^{8}B 太陽ニュートリノの sterile への振動量の測定の結果、$\sin^2\eta \leq 0.13(\nu_e \rightarrow \cos\eta\nu_{\rm a} + \sin\eta\nu_{\rm s})$ と否定的な結果を示している [25]。しかし、sterile との質量差 Δm^2_{14} が MSW 効果を起こす領域にある場合、^{8}B では sterile の影響をほとんど受けること無く、pp ニュートリノのエネルギー領域で sterile への振動が起こり、pp ニュートリノのフラックスが大きく抑制されることを予言する興味深いモデルがある [26]。

1. ν_e-ν_x の振動解が、LMA 解の領域にある。
2. $\nu_4 \sim \nu'_x$ が、ν_1 よりも $\Delta m^2_{14} \sim 10^{-6}$ だけ重く、ν_e が少し ν_4 に入ってくる。$\tan^2\theta_{14} \sim 10^{-3}$ として、ν_e-ν'_x の振動解が、SMA 解の領域にある。
3. ν_e が ν_3 には入ってこない。

このとき、4 成分表示での混合は次のように表される。

$$\nu_1 = \cos\theta_{12}(c_{14}\nu_e - s_{14}\nu'_x) - \sin\theta_{12}\nu_x \quad (1.38)$$
$$\nu_2 = \sin\theta_{12}(c_{14}\nu_e - s_{14}\nu'_x) + \cos\theta_{12}\nu_x \quad (1.39)$$
$$\nu_3 = c_{13}\nu'_a \quad (1.40)$$
$$\nu_4 = c_{14}\nu'_x + s_{14}\nu_e \quad (1.41)$$

この場合、太陽ニュートリノにおける ν_e の振動は Δm^2_{12} と新たに小さな Δm^2_{14} の 2 つの共鳴領域を持つことになる。

Δm^2_{12} の共鳴は、完全に断熱条件を満たすので $E > 7$MeV で共鳴条件となり ν_e の生き残り確率は、$P_{ee} \sim \sin^2\theta_{12}$ となる。$E < 0.5$MeV では、共鳴は起こらないので真空振動を平均化したものに等しくなる。これは、LMA 解の条件に相当する。一方、Δm^2_{14} の効果は SMA 解に相当し、Δm^2_{14} と $\tan\theta = \tan^2\theta_{14}/cos^2\theta_{12}$ によって特徴付けられる。この効果により、pp ニュートリノのエネルギー領域で ν_e の生き残り確率は抑制される (図 1.10)。

また、$0.5 < E < 7$MeV で Δm^2_{14} による効果は断熱境界として現れるが、Δm^2_{12} によって緩和されてしまうので、この効果は ^{8}B のエネルギー領域には現れない。よって、この効果を調べるには pp ニュートリノのエネルギースペクトルの情報が重要である。また、

sterile 成分量を調べるには、電子ニュートリノと active ニュートリノの両方を見る必要があり、これは CC 反応を用いた実験と電子散乱反応を用いた実験の両方を行わなければならない。

pp ニュートリノの抑制によって軽い sterile ニュートリノを発見することができれば、これまでの標準モデルに拡張を必要とするだけではなく、様々な実験の結果の解釈にも変更を迫る。

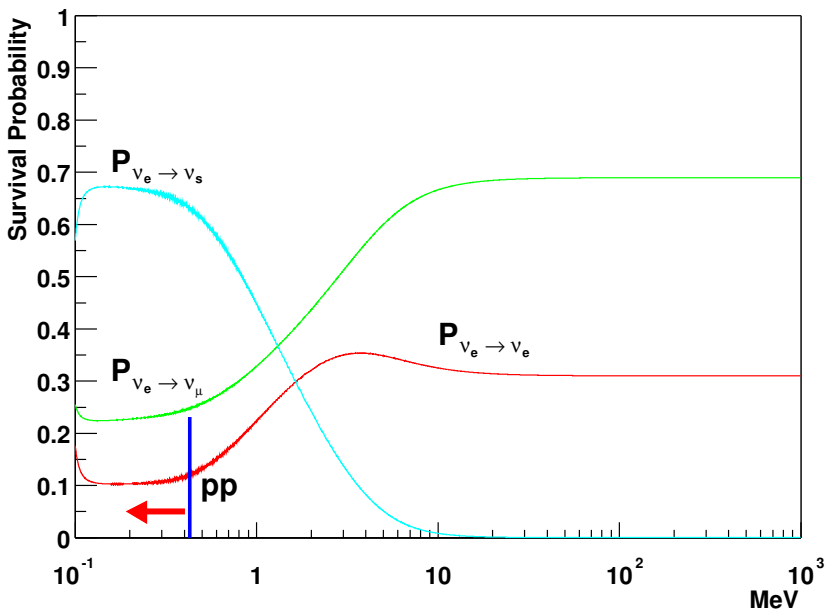


図 1.10: 太陽ニュートリノ ν_e を地球上で観測したときの振動確率 $P_{\nu_e \to \nu_e}$、$P_{\nu_e \to \nu_\mu}$、$P_{\nu_e \to \nu_s}$、振動パラメータは $(\sin^2 2\theta_{12}, \Delta m^2_{12}) = (0.8561, 7.1 \times 10^{-5}\mathrm{eV}^2)$、$(\sin^2 2\theta_{14}, \Delta m^2_{14}) = (0.004, 1.0 \times 10^{-6}\mathrm{eV}^2)$、$\sin^2 2\theta_{24} = 0$。

第2章　原子核^{160}Gd

2.1　^{160}Gd のニュートリノ捕獲反応

^{160}Gd 原子核 (自然存在比 21.8%) による低エネルギー太陽ニュートリノ検出器の可能性が Ragahavan により提案された [27]。^{160}Gd 原子核はニュートリノを捕獲すると、エネルギー $E_{e^-} = E_{\nu_e} - 244\text{keV}$ の電子を放出して励起状態 ^{160}Tb* へ遷移する。^{160}Tb* 原子核は寿命 8nsec でエネルギー 75keV のγ 線を放出し、さらにその後、寿命 86.5nsec でエネルギー 63.7keV のγ 線を放出して基底状態に遷移する。その様子を図 2.1 に示す。

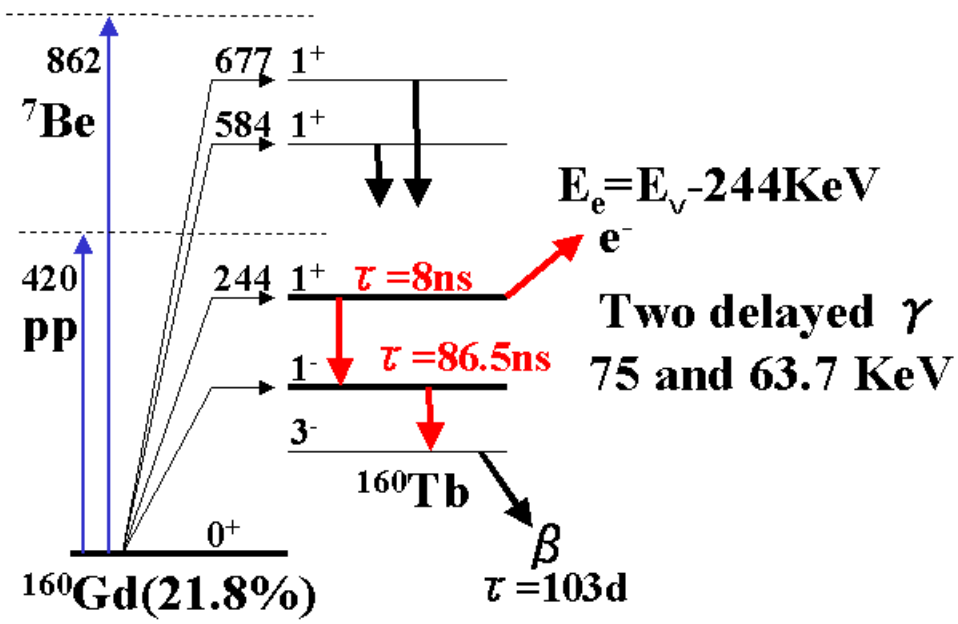


図 2.1: ^{160}Gd のニュートリノ捕獲反応

この反応の閾値は 244keV と低く、862keV の ^{7}Be ニュートリノ (単色エネルギー) と最大エネルギー 420keV の pp ニュートリノ (連続スペクトル) が観測できる。また、図 2.1 に示すように 3 つの連続した信号が得られるので、特徴的な三重同時計測が可能となる。さらに、ニュートリノ捕獲反応により放出される電子を直接測定できるので、ニュートリノのエネルギーが分かり、また反応時間が分かるので太陽ニュートリノの時間変動の研究にも適している。

天然に存在する Gd,10ton を用いた検出器を 5 年間稼働させた場合、ニュートリノ振動がない場合に期待される事象数は pp ニュートリノで 260 事象、^{7}Be ニュートリノで 285 事象となる。^{176}Yb、^{160}Gd のニュートリノ捕獲率を表 2.1 に示す。

	^{176}Yb		^{160}Gd	
ニュートリノ源	SNU	event/year/10tonYb	SNU	event/year/10tonGd
pp	550	76	200	52
^{7}Be	448	62	218	57
CNO	106	15	52.4	14
pep	29.5	4.1	16.8	4.4
^{8}B	14.8	2.1	10.7	2.8
total	1148	159	301	130

表 2.1: ^{176}Yb、^{160}Gd のニュートリノ捕獲率

^{160}Gd により特徴的な三重同時計測が可能となる一方、その同位体 ^{152}Gd(自然存在比 0.2%) のα 崩壊は半減期 1.1×10^{14}year という長さにもかかわらず、10tonGd を用いた場合 15kHz となりニュートリノイベントに対して 10^{10} 倍大きい。このため Gd 自身からのバックグラウンドを減らすために、測定器を細分化した上、さらに高分解能の測定をする必要があると考えられる。

この ^{152}Gd の崩壊で生じるα 線のエネルギーは $E_\alpha = 2.14$MeV であるが、α クエンチングにより $1/10 \sim 1/20$ 程度となることが予想される。このため pp ニュートリノに対するバックグラウンドになると考えられるが、測定器のパラメータによっては、十分に小さくできることが期待できる。

このような ^{160}Gd を使った検出器が実現すれば、低エネルギー太陽ニュートリノの観測によりニュートリノ振動解に対し重要な情報を与えてくれる。この検出器では荷電カレント反応のみを捕らえるので、フレーバーを ν_e だけに特定できる。このため、他の電子散乱を用いた実験結果と比較することで、精度の良いニュートリノ振動パラメータを求めることが可能となる。

ちなみに ^{160}Gd の他に荷電カレント反応を用いた低エネルギー太陽ニュートリノ検出器として、^{115}In,^{176}Yb 等が考えられている。^{115}In は、天然存在比が 95.7% と多く、特別な濃縮は必要ではない。しかし、^{115}In 自身が起こすβ 崩壊がバックグラウンドとなるため、今のところ実現はされていない。^{176}Yb は ^{160}Gd と同様に、それ自身のβ 崩壊はないが天然存在比が 12.8% と少ない。また、二重同時計測であるため検出器内の放射性物質が大きなバックグラウンドとなってしまう。これらは、LENS 実験で開発が進められている。

2.2 ニュートリノ捕獲率の較正

前節で述べたように、^{160}Gd 原子核は低エネルギー太陽ニュートリノの検出に優れた特性を持っている。しかし、ニュートリノ捕獲率は表 2.1 のようになるが、その値はニュートリノ捕獲断面積や ^{160}Gd と ^{160}Tb* の準位間のエネルギーの不確定さによって大きな誤差を持っている。このことは、ニュートリノ捕獲率から太陽ニュートリノフラックスの絶対量を求めるときに問題となる。

LENS 実験グループでは、^{176}Yb、^{160}Gd の ^{3}He 捕獲反応を用いて、捕獲後の励起状態の準位を詳しく調べた。結果を表 2.2 に示す [28]。

^{176}Yb(^{3}He, t)^{176}Lu

J^π	励起準位 (keV)	B(GT) or B(F)
1^+_1	194.5	0.20 ± 0.04
1^+_2	338.9	0.11 ± 0.02
1^+_3	3070	0.62 ± 0.08
0^+_{IAS}	16026 ± 6	36

^{160}Gd(^{3}He, t)^{160}Tb

J^π	励起準位 (keV)	B(GT) or B(F)
1^+_1	138.7	0.054 ± 0.009
1^+_2	232.8	0.014 ± 0.002
1^+_3	478.2	0.160 ± 0.03
1^+_4	573.0	0.021 ± 0.004
1^+_5	664.7	0.031 ± 0.005
1^+_6	1120	~ 0.034
1^+_7	1310	~ 0.025
1^+_8	1500	~ 0.043
1^+_9	1610	~ 0.034
1^+_{10}	1670	~ 0.051
1^+_{11}	1750	~ 0.051
1^+_{12}	1900	~ 0.056
1^+_{13}	2040	~ 0.259
0^+_{IAS}	15019 ± 6	32

表 2.2: 励起状態の準位と核行列要素

ただし、B(GT)、B(F) は Gamow-Teller、Fermi 型遷移の核行列要素である。このような不確定さの大きい行列要素では具合が悪いので、実際の太陽ニュートリノ検出器ではニュートリノを用いた較正を必要とする。これによって、検出器の性能を含めた検出効率

の不確定さも除くことができる。

励起エネルギー準位の正確な行列要素を求めるためには、非常に強い単色エネルギーニュートリノをそれぞれの準位ごとに用意するのが望ましい。しかし、$^{176}\mathrm{Yb}$、$^{160}\mathrm{Gd}$ を比較した場合、$^{176}\mathrm{Yb}$ は $1\mathrm{MeV}$ 以下の励起エネルギー準位が 2 つであるのに対し、$^{160}\mathrm{Gd}$ では 5 つもあるので較正に用いるニュートリノソースを用意するのが困難となる。

$^{176}\mathrm{Yb}$ の場合、2 つの励起準位に適したニュートリノソース $^{51}\mathrm{Cr}(E_\nu = 751\mathrm{keV}(90\%))$、$^{75}\mathrm{Se}(E_\nu = 465\mathrm{keV}(96\%))$ があるが、$^{160}\mathrm{Gd}$ ではこの他にも別のニュートリノソースが必要となると考えられる。ただし、1_2^+ は行列要素が小さく $(\sigma \propto |B^2|)$、1_4^+、1_5^+ はエネルギー閾値が高い $(\sigma \propto (E_\nu - E_{thre})^2)$ ので反応断面積は比較的小さく、誤差の大きさがそれほど問題とならないかもしれない。

ニュートリノソースを使った較正自体、Ga 実験で Cr を用いて行われている。自然天然存在比は

$$^{50}\mathrm{Cr} : 4.35\% \quad ^{52}\mathrm{Cr} : 83.8\% \quad ^{53}\mathrm{Cr} : 9.5\% \quad ^{54}\mathrm{Cr} : 2.35\%$$

である。ここで ν_e を最も多く放出するのは、反応断面積の大きい $^{50}\mathrm{Cr}$ の中性子捕獲によって $^{51}\mathrm{Cr}$ を供給し、半減期 $27.7\mathrm{day}$ での崩壊

$$^{51}\mathrm{Cr} + e^- \rightarrow ^{51}\mathrm{V} + \nu_e \tag{2.1}$$

による ν_e 放出反応である。長時間の中性子照射を実現するには原子炉を用ればよいので、放射性線源 $^{51}\mathrm{Cr}$ の量を飽和量に保つことが可能となる。

$^{160}\mathrm{Gd}$ には多準位による複雑さがあるため、扱いづらいという欠点はあるものの、$^{176}\mathrm{Yb}$ が 2 重同時計測であるのに対し $^{160}\mathrm{Gd}$ では 3 重同時計測が可能であるためバックグラウンドに対するメリットは非常に期待できる。

第3章　ガドリニウム含有液体シンチレータの開発

3.1　液体シンチレータ

シンチレータの研究は、1937 年に Kallmann が有機物質に紫外線をあて、蛍光を観測して以来、光電子増倍管の開発とともに発展してきた。1947 年、彼はさらに大容量の検出器を得るために、有機溶媒中に蛍光物質を溶かし込むことにより、液体シンチレータを開発することに成功した [29]。

液体シンチレータは、形を自由に変えられる上に、作りやすいという利点がある。また、溶媒や発光溶質、波長変換剤 (Wave Length Shifter WLS) などの選択肢が多く、比較的簡単に改良できる。しかし、原子番号が小さくなりがちなのでγ 線が逃げやすいなどの欠点もある。

3.1.1　GSO 結晶と液体シンチレータ

^{160}Gd を用いた太陽ニュートリノ検出器の候補として、GSO(Gd_2SiO_5) 結晶シンチレータがある [30]。GSO 結晶は、Gd 含有率が 74%(重量比) であり、高密度 ($6.71 \mathrm{g/cm^3}$) であるため実験装置を小さくできる。また、発光量が大きい ($8,000 \mathrm{photons/MeV}$) ため低エネルギーでも測定しやすい。しかし、発光時定数 (発光の減衰時間) の長さ (τ =30 $\sim$ 60nsec) のため三重同時計測のうちの第 2 信号 (τ =8nsec) を分離できず、バックグラウンドの克服が困難となる。よって我々は、もっと時定数の短いシンチレータを目標とした。このような目的に適した検出器に液体シンチレータがある。液体シンチレータは通常 $5nsec$ 以下の発光時定数であり、三重同時計測のうちの第 2 信号を分離できるような短い時定数を期待できる。また、比較的安価なことから大型の検出器に向いている。そこで我々は、液体シンチレータに Gd 化合物を溶かすことにした。

3.1.2　開発の目標

まず液体シンチレータに溶ける Gd 化合物を探さなければならない。その後、性能を調べてそのパラメータを用いて装置の設計をすることになるが、ある程度以上の性能をもっている必要がある。そこで、開発する液体シンチレータのパラメータとして表 3.1 のような目標を定めた。

一般に Gd 濃度の増加に伴い、発光量は減少してしまう。これは Gd 化合物がエネルギー伝達機構を持たないためで、すべての物質は多かれ少なかれクエンチャーとなる。(付録 A 発光機構 参照) このことは、開発するうえで大きな制限になることが予想される。溶解

Gd 溶解度	$> 5\%$(Gd 重量比)
発光量	$> 2,000$photons/MeV
発光時定数	$<$ 数 nsec
減衰長	$>$50cm

表 3.1: 開発の目標

度、発光量、減衰長はいずれも装置の形、大きさを決めるパラメータとなる。また、時定数は励起寿命 (τ =8nsec) よりも短いほど三重同時計測の効率が高くなる。

3.1.3 シンチレータカクテル

液体シンチレータに試料を溶かし込むという手法は、生化学、環境化学、農学、医学などの様々な分野で盛んに行われている。最近の傾向としては、溶媒に界面活性剤を加えることで、親水性、親油性のどちらの物質も溶かすことができるようにしたシンチレータカクテルを利用するようになっている。

そこで我々はシンチレータカクテルの利用を考え、次の 4 つを侯補に選んだ。

- Scintisol EX-H (同仁化学社製)
- Scintisol 500 (同仁化学社製)
- ULTIMA GOLD (Packard 社製)
- PICO FLUOR 15 (Packard 社製)

これらに、有機、無機両方の Gd 化合物を溶かし込んでみた。(表 3.2)

ULTIMA GOLD, PICO FLUOR 15 は白濁してしまいうまくいかなかったが、EX-H は硝酸 Gd、過塩素酸 Gd をそれぞれ 5%、3% 溶かし、Scintisol 500 もそれぞれ 6%、5% 溶かすことができた。

(Gd 重量%)

Gd 化合物	性質	Scintisol EX-H	Scintisol 500	ULTIMA GOLD	PICO FLUOR 15
$GdCl_3 \cdot 6H_2O$	無色結晶 (無機)	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$
$Gd(CH_3COO)_3 \cdot 4H_2O$	無色結晶 (無機)	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$
$Gd_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$	無色結晶 (無機)	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$
$Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$	無色結晶 (無機)	5%	6%	$< 1\%$	$< 1\%$
$Gd(ClO_4)Cl_3 \cdot 8H_2O$	無色結晶 (無機)	3%	4%	$< 1\%$	$< 1\%$
$Gd(C_5H_7O_2)_3 \cdot H_2O$	無色結晶 (有機)	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$
$Gd_2(C_4H_4O_6)_3 \cdot 5H_2O$	無色結晶 (有機)	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$	$< 1\%$

表 3.2: Gd 化合物の溶解度

次に、我々が考えたことは、シンチレータカクテルの主な材料である界面活性剤、発光物質、有機溶媒を使って、市販のシンチレータカクテルよりもさらに性能のよいものを作ることだった。そのほうが、実用化して大量の液体シンチレータを作るときに、コストの面でもメリットが大きいと考えられる。

界面活性剤は、水に溶けたときの分子の解離状態によって種類が分けられる。(表 3.3)

種類	性質
陽イオン界面活性剤 (カチオン)	電荷は $+$
陰イオン界面活性剤 (アニオン)	電荷は $-$
非イオン界面活性剤 (ノニオン)	イオン解離しない
両性界面活性剤	電荷は $+$,$-$ 両方持つ

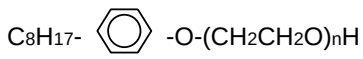
表 3.3: 界面活性剤の種類

これらの中で、ノニオンは酸、アルカリに対し比較的安定である。中でも、アルキルフェノール型のものは強酸、強アルカリにも耐えられる。よって、これらの中から選ぶことにした。

日本油脂で製造されている次の界面活性剤を侯補とした [31]。(図 3.1)

HLB とは、親水性と親油性の均衡をあらわし、親油性の最も強いものを 1 とし、親水性の最も強いものを 40 としている。また曇点とは、界面活性剤を水溶液に溶かし加熱したときに分離し、結果として濁った状態になる温度である。これらを考慮して、この 2 つ

・HS210　　液体、HLB：13。6、曇点：70 ~ 78℃
(ポリオキシエチレンオクチルフェノールエーテル)



・NS210　　液体、HLB：13。3、曇点：46 ~ 54℃
(ポリオキシエチレンノニルフェノールエーテル)

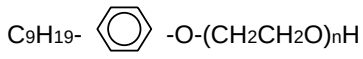


図 3.1: 界面活性剤の侯補

を選んだ。

まず、これらの界面活性剤がどれだけ Gd 化合物を溶かすのかを調べるため、有機溶媒などを加えずに溶解度を調べた。その結果、硝酸 Gd が HS-210 に対し 8%、過塩素酸 Gd が 5.1% 溶けたが、過塩素酸 Gd は黄色く変色してしまった。また NS-210 にも、硝酸 Gd は 8% 溶けた。今回は、Gd 化合物として硝酸 Gd、シンチレータカクテルとして界面活性剤 HS-210, 有機溶媒 PseudoCumene, 第 1 溶質 PPO, 第 2 溶質 Bis-MSB を選ぶことにした。界面活性剤と有機溶媒の比を (20/80),(40/60) として硝酸 Gd を溶かしたところ、それぞれ 3%、8% 溶けた。

3.2 発光量の測定

最も多く Gd を溶かすことができた硝酸 Gd を使って、Gd 濃度に対する発光量の変化を測定した。

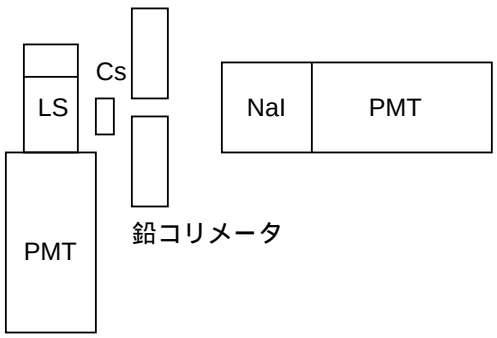


図 3.2: 発光量測定

図 3.2 のようにして $4.5\mathrm{cm}\phi\times6\mathrm{cm}$ のバイアルに $50\mathrm{ml}$ の溶液を入れ、$^{137}\mathrm{Cs}$ 線源 $(662\mathrm{keV}\gamma)$ の後方散乱 $(477\mathrm{keV})$ を用いて液体シンチレータにエネルギーを落して発光させた。

後方散乱とは散乱角 $\theta = 180°$ のコンプトン散乱のことである。コンプトン散乱の反跳電子のエネルギー E_e は

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2}(1 - \cos\theta)} \tag{3.1}$$

で表せるので、後方散乱 $(\theta = 180°)$ では

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_e c^2}} \tag{3.2}$$

となる。NaI で後方散乱γ 線 $(185\mathrm{keV})$ を同時計測すれば、後方散乱したイベントのみを取り出せる。(図 3.3)

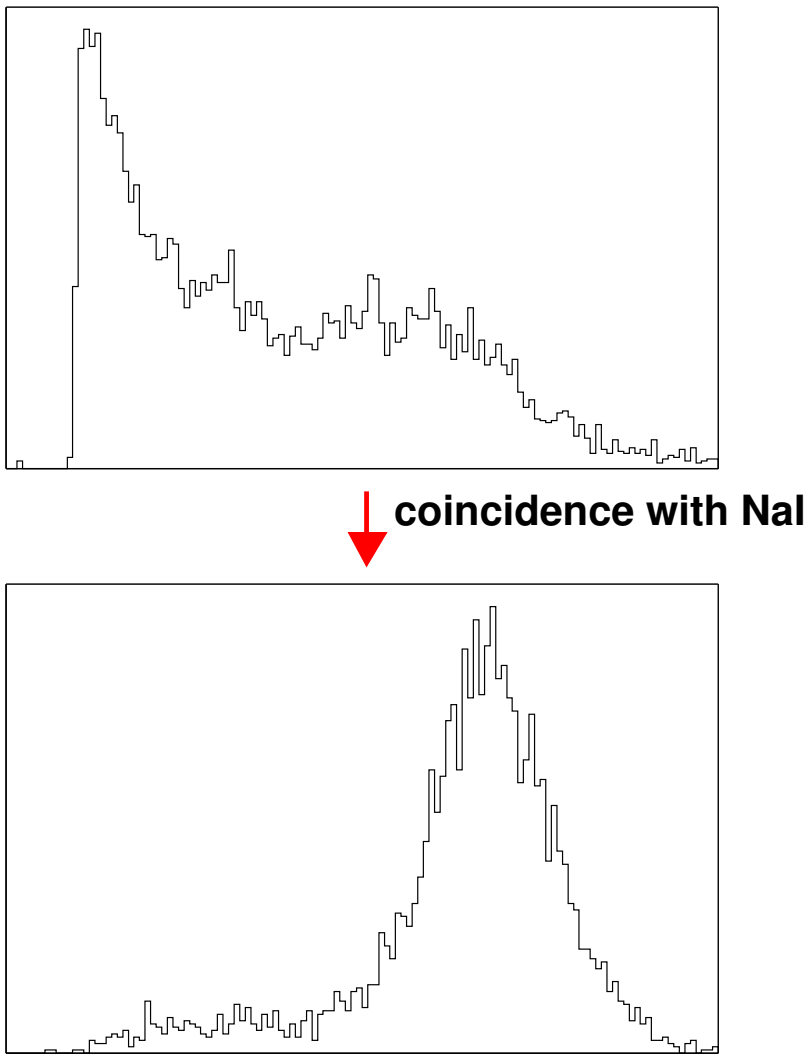


図 3.3: 液体シンチレータの発光の波高分布

同時計測したとき、コンプトンエッジだけが取り出されて 477keV のβ 線に対するピーク、分解能が非常に分かりやすくなっている。発光位置、散乱角の不確定さなどの諸条件によって光量のゆらぎがあるとしても、統計量が十分ならばピークの中心値の誤差はほとんどない。よって、このピークの中心値が発光量に比例すると見なすことができる。

このような方法を用いて、様々なシンチレータカクテルに対し硝酸 Gd を溶かしたときの発光量の濃度変化を調べた。結果を図 3.4 に示す。

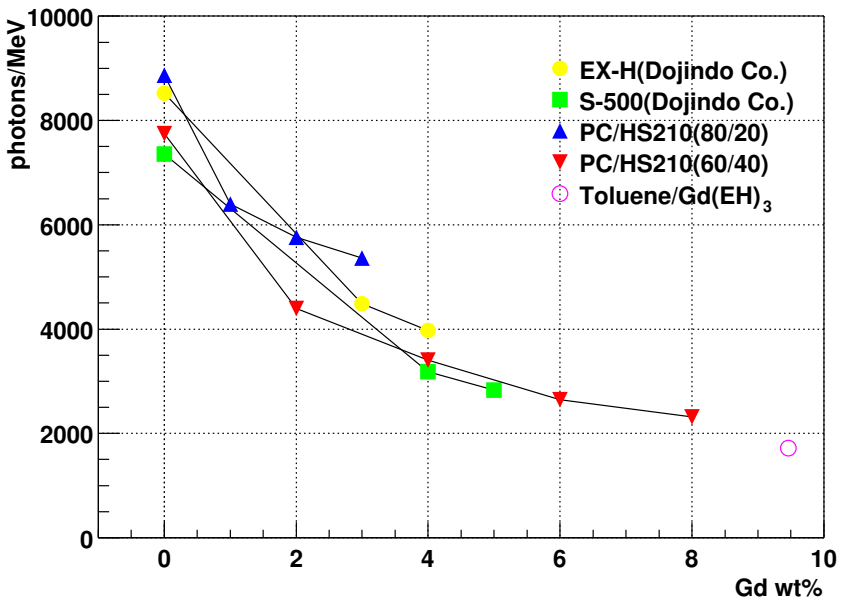


図 3.4: Gd 濃度と発光量の関係

1MeV あたりの photon 数は、Borexino 実験で使われている液体シンチレータ (Pseudocumene100%+PPO1.5g/l) を基準として求めた。(N_2 バブリングなしで約 $8,630$photons/MeV)

Gd 濃度の増加とともに光量が減少している。これは、Gd などの不純物がエネルギーの伝達を妨げているためであると考えられる。よって、すべての液体シンチレータで同様の減少の曲線となることが予想される。$Gd(EH)_3$ とは、$Gd[OOCCH(C_2H_5)C_4H_9]_3$ のことで、LENS 実験で太陽ニュートリノ検出用に検討されていたものである。$Gd(EH)_3$ は最も Gd を溶かしているが、硝酸 Gd+PC/HS210(60/40) の曲線の延長線よりも下にありそうである。つまり同一の Gd 濃度で比べれば、おそらく硝酸 Gd の方が光量が多いだろう。よって硝酸 Gd を用いた液体シンチレータの発光量は、十分に目標を達したといえる。

最終的に、我々が選んだガドリニウム化合物、シンチレータカクテルの組み合せは

ガドリニウム化合物

$$Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$$

シンチレータカクテル

PseudoCumene(有機溶媒)	$\cdots 60\%$
NS210(界面活性剤)	$\cdots 40\%$
PPO(第 1 溶質)	$\cdots 5$g/l
Bis-MSB(第 2 溶質)	$\cdots 0.1$g/l

$Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ は、8%まで溶けることが分かったが Gd 濃度の増加にともなうクエンチ、光の散乱による発光量、透過率の減少を考慮しなくてはならない。

界面活性剤に HS210 ではなく NS210 を選んだ理由は、HS210 で作製した液体シンチレータが 4 か月程度で変色してしまったからである。長期安定性は、イベント数の少ないニュートリノを測定する上で重要な要素である。NS210 は約 1 年で変色したがこの違いは、少しだけ化学式が違うことから起きる化学的性質にあると思われる。長期安定性については、次節で詳しく調べることにする。

3.3 長期安定性の確認

3.3.1 酸化テスト

前節で述べたように、界面活性剤と硝酸 Gd の組み合わせによる変色は、液体シンチレータの発光量、透過率などの性能を低下させる原因になる。そこで長期安定性を確認するために、45 ° C に保った恒温槽中に試料を置き加速試験を行った。温度は、PseudoCumene の引火点 (54 ° C) を考慮して設定した。一般に気温が 10 ° C 上昇すると、化学反応の速度は約 2 倍になる。検出器を神岡鉱山に置くことを想定すると、鉱山内部の気温は約 15 ° C なので、45 ° C にした場合、8 倍の加速試験をすることになる。その結果、作成した液体シンチレータを恒温槽に入れて 6 日後、薄い茶色に変色した。これは、常温で変色するのにかかった時間、約 1 年と比較して加速を考慮しても短期間であった。

変色の原因としては、酸化による化学変化が考えられるが、何が酸化されてしまっているのかを特定しておく必要がある。そこて、表 3.4 のような組み合せで希硝酸 (1mol/l) を混ぜて 45 ° C の恒温槽で酸化テストを行った。

HS-210(20ml)+希硝酸 (10ml)	20 日で黄色に変色
NS-210(20ml)+希硝酸 (10ml)	31 日で黄色に変色
PseudoCumene(20ml)+PPO(0.1g)+希硝酸 (10ml)	28 日で黄色に変色
PseudoCumene(20ml)+Bis-MSB(0.01g)+希硝酸 (10ml)	28 日で黄色に変色
PseudoCumene(20ml)+希硝酸 (10ml)	変色しない

表 3.4: 45 ° C 恒温槽中での酸化テスト

このように、界面活性剤、発光物質ともに酸化されやすい性質を持つ。HS-210 が NS-210 よりも酸化されやすいことは、ここでも再現された。この結果から、硝酸 Gd がこれらの物質に作用し、酸化していることが考えられる。これを防ぐ手段として、界面活性剤や発光物質を別なものに変えることや、酸化作用の無い Gd 化合物を使用すること、また中和剤や酸化防止剤によって酸化を回避するなどが考えられる。

3.3.2 酸化防止剤

有機化合物の劣化は熱、光、機械力、金属イオンなどと酸素との作用により生ずる酸化劣化であり、そのメカニズムはラジカル連鎖反応である。このため、酸化劣化防止において最も重要なのは、劣化の初期段階でラジカル反応を停止し自動酸化を停止することである。

酸化防止剤は機能面からは一般に、一次酸化防止剤 (ラジカル連鎖禁止)、二次酸化防止剤 (過酸化物分解剤) に分類される。ラジカル連鎖禁止剤は、生長反応で生成した ROO と次のように反応して、ラジカル連鎖を停止しする機能を持つ化合物のことをいう。

$$\mathrm{ROO} + \mathrm{AH} \rightarrow \mathrm{ROOH} + \mathrm{A}(\text{ 安定ラジカル }) \tag{3.3}$$

ROOH は不安定な化合物であり、熱などによって RO と OH に解離され、酸化劣化を再び引き起こすものであるから、ROOH をさらに安定な化合物、例えば ROH に分解させることも酸化防止を図る上で重要である。このような機能を有するものを過酸化物分解剤といい、イオウ系酸化防止剤やリン系酸化防止剤がこれに属している。イオウ系やリン系はそれ単独で持ち手も自動酸化を効果的に防止することはできず、通常フェノール系の一次酸化防止剤と併用さられる。

液体シンチレータの変色が、界面活性剤または発光物質の酸化によるものであると分かったので、酸化防止剤 BHT(2-6-Di-tert-butyl-4-methylphenol) の使用を試みた。BHT は水酸基 (-OH) を持っており、これが電子を 1 つ放出してラジカル状態になるほうが安定であるため、非常に酸化されやすい物質である。BHT は高温でも非常に安定していて、以前は食品等の酸化防止にも使用されてきたが、発ガン性などの危険性から現在ではあまり使用されておらず、一部の接着剤やゴム等樹脂の酸化防止に使用されている。また、非常に安価であり、1kg あたり 200 ∼ 400 円程度であるため、大量に使用する場合にも適している。

BHT の効果を調べるために、作成した液体シンチレータに 0g/l、0.1g/l、1g/l の BHT を加えた試料を 45 ° C の恒温槽に入れテストした。また、あらかじめ N_2 バブリングしておき溶存酸素を除去したときの効果も同時に調べた。結果を表 3.5 に示す。

BHT	0g/l	6 日後に薄い茶色
BHT (N_2bubble)	0g/l	6 日後に薄い茶色
BHT	0.1g/l	6 日後に非常薄い黄色
BHT(N_2bubble)	0.1g/l	6 日後に非常薄い黄色
BHT	1g/l	13 日後に非常に薄い黄色
BHT(N_2bubble)	1g/l	13 日後に非常に薄い黄色

表 3.5: 45 ° C 恒温槽中での BHT による長期安定性のテスト

N_2 バブリングの効果はみられなかったが、BHT 濃度に対しては明らかに効果がみられた。N_2 バブリングによって変わらなかったことから、この場合の酸化は溶存酸素によるものではないとこが分かった。1g/l の BHT では、何も入れなかったときの約 2 倍長持ちした。また、0.1g/l よりも酸化の速度は抑えられた。何も入れないとき常温で約 1 年持つことから、これでおよそ 2 年間は変色を抑えられると考えられるが、実用的には最低 10 年間は保証された液体シンチレータを作りたい。そのため、今後は酸化防止剤の量を増やしたり、中和剤などを用いた試験を行い長期安定性を確認していくことが必要である。

3.4　透過率の測定

Gd 濃度に対する透過率の変化を測定した。測定には、吸光光度計を用いた。(図 3.5)

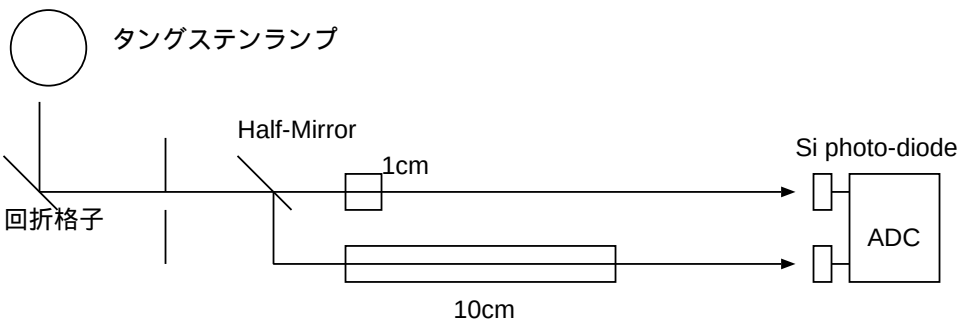


図 3.5: 吸光光度計 U2000F(HITACHI)

この装置は、タングステンランプからの光が 2 つに分けられて、1cm、10cm の石英セルを通った後の光の強度の差から透過率を求める。透過率/9cm は、図 3.6 のようになった。

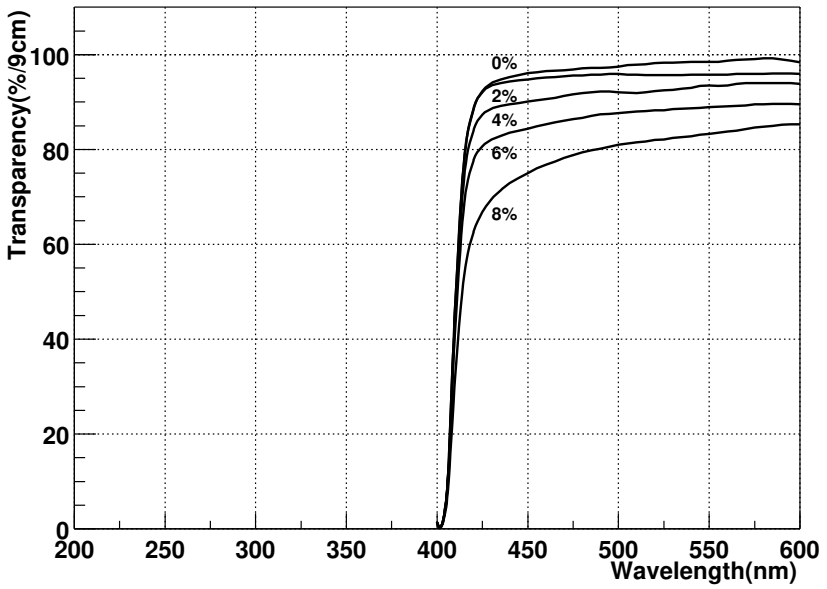


図 3.6: Gd 濃度に対する透過率

この結果から、減衰長 (Attenuation Length) を求める。ここで言う減衰長とは、発光の全波長領域において元の光の強度の e^{-1} となる長さである。長さ l(cm) における波長ごと

の透過率は、透過率/9cm の結果を使って求まる。

$$T_{l(\mathrm{cm})} = e^{-\frac{l}{\lambda}} \tag{3.4}$$

$$T_{9(\mathrm{cm})} = e^{-\frac{9}{\lambda}} \tag{3.5}$$

これらの関係から

$$T_{l(\mathrm{cm})} = (T_{9(\mathrm{cm})})^{\frac{l}{9}} \tag{3.6}$$

となる。発光スペクトル、透過率の積を発光の全波長領域で積分すると、長さ $l(\mathrm{cm})$ における光の強度は $\int spec(x) \times T_{l(\mathrm{cm})}(x)dx$ となるので

$$\int spec(x) \times T_{l(cm)}(x)dx = e^{-1} \tag{3.7}$$

となる $l(\mathrm{cm})$ を求めればよいことが分かる。発光スペクトルは第 2 溶質の Bis-MSB によると考えられる [32]。(図 3.7)

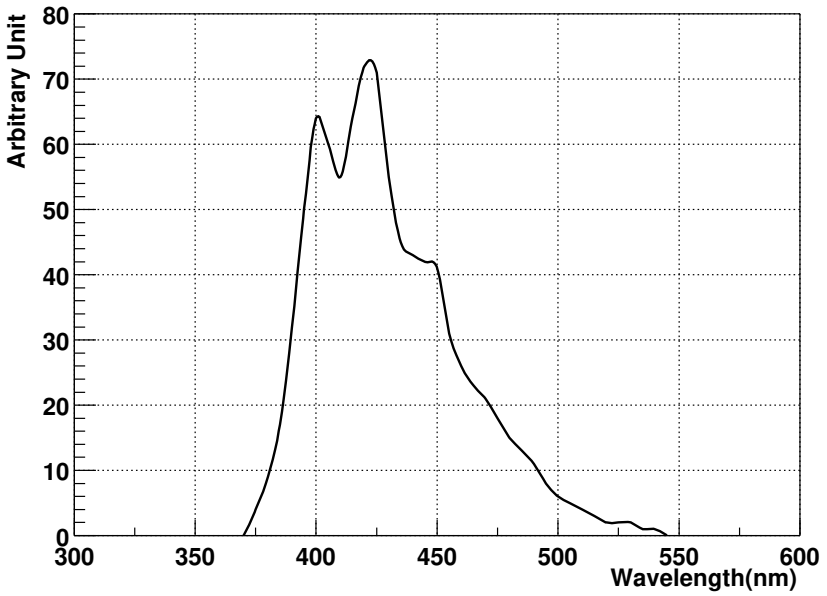


図 3.7: Bis-MSB の発光波長

これらを使って、減衰長を求めると次のようになった。(表 3.6)

光の減衰の原因として、液体シンチレータ中に Bis-MSB の発光スペクトルに重なる吸収スペクトルを持った物質が含まれていることが挙げられる。これが、Gd 濃度の増加にともなう減衰長の減少の理由である。また、Bis-MSB 自身にも発光スペクトルと重なる吸収スペクトルの部分 (<400nm) がある。このため、図 3.6 のように 400nm 付近の透過率が悪くなってしまう。しかし、最近 PMP というストークスシフトが非常に大きく、吸収、発光スペクトルの重なりが小さい発光溶質 (1 溶質) が開発された [33]。これによって、

Gd 濃度	減衰長
0%	90cm
2%	76cm
4%	45cm
5%	39cm
6%	29cm
8%	17cm

表 3.6: Gd 濃度と減衰長の関係

光の損失が少なくなり透過率がもっと良くなるかもしれない。よって、我々の液体シンチレータの今後の改良の余地となり得るが、今回は使用していない。

また一般に、粘性を持つ液体は光を散乱しやすいという性質を持つ。実際、Gd 濃度が 6% を越えると急激に強い粘性を持つようになったのに対応して、減衰長も急に減少している。この結果から、減衰長がそんなに悪くなっていない濃度 5% のもの今後を用いることにした。目標の 50cm には届かなかったが、その分発光量が大きいのでそれほど問題とはならない。

3.5 発光時定数の測定

開発した液体シンチレータ (Gd 濃度 5%) の発光時定数を調べる。セットアップは図 3.8 のようにした。

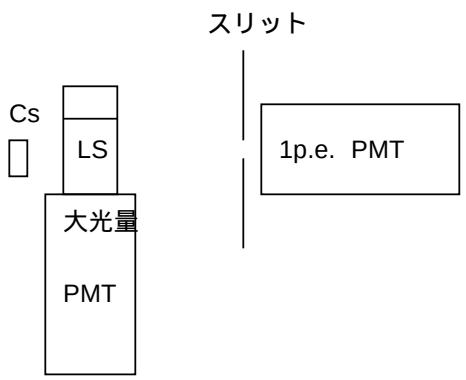


図 3.8: 発光時定数の測定

大光量側で TDC の start をとり、1p.e.(photo electron) 側で stop をとれば、発光の時間分布が見えるはずである。図 3.9 に 1p.e. 側の TDC と ADC の値の分布を示した。1p.e.

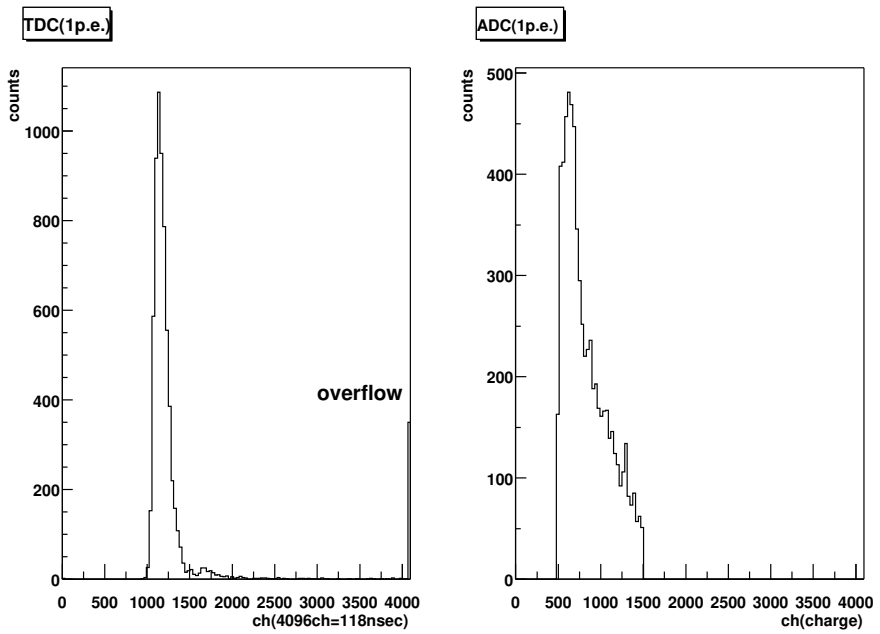


図 3.9: 1p.e. 側の TDC と ADC

側の ADC の値で cut をしてある。TDC の overflow は 1p.e. 側に p.e. が入らなかったも

ので、それ以外が p.e. が入ったものを示している。cut をする前は、p.e. が入ったものは 5.2% しかなかったのでほとんどが 1p.e. であると考えられる。また、発光した photon 数を安定させるために大光量側の ADC でも、cut をした。

次に、この発光時間分布をフィッティングする。一般に、減衰曲線は 2 つの指数関数の和で表すことができる。

$$L(t) = \frac{A}{\tau_S} e^{-\frac{t}{\tau_S}} + \frac{B}{\tau_L} e^{-\frac{t}{\tau_L}} \tag{3.8}$$

ただし、$A+B=1$ で規格化をする。走査による時間の拡がり (Transit Time Spread TTS) を考慮して、Gauss 関数

$$G(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{1}{2}(\frac{t-t'}{\sigma})^2} \tag{3.9}$$

に $L(t)$ の重みをとった関数

$$F(t) = \int_{-\infty}^{\infty} L(t')G(t-t')dt' \qquad L(t') = 0(t' < 0) \tag{3.10}$$

でフィッティングすればよい。パラメータは、A、τ_S、τ_L、σ、$t_0(L(t)$ の 0 点) の 5 つで、これらを最尤法 (Maximum likelihood) を使って求めた。(図 3.10)

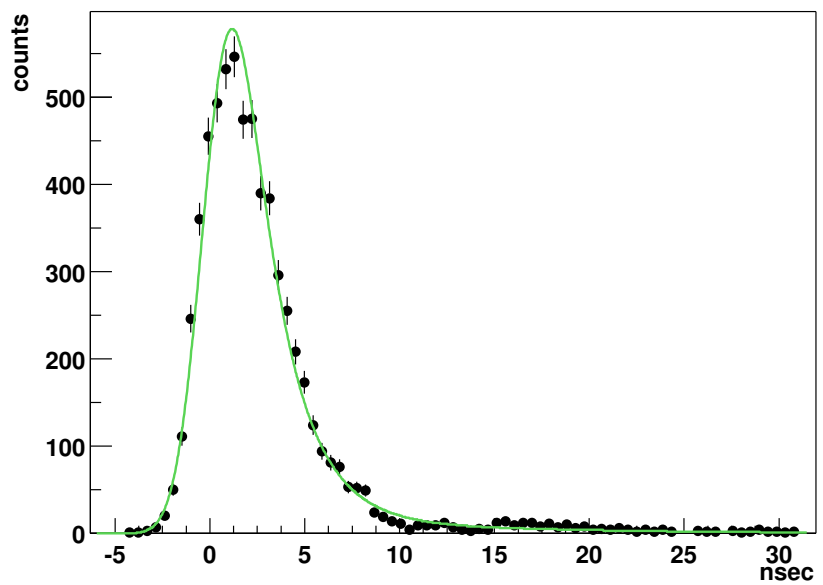


図 3.10: 発光時間分布のフィッティング

その結果、

$$L(t) = \frac{0.91}{2.0} e^{-\frac{t}{2.0}} + \frac{0.09}{12.2} e^{-\frac{t}{12.2}} \tag{3.11}$$

$$\mathrm{TTS} = 1.2 \quad \mathrm{nsec} \tag{3.12}$$

となった。減衰曲線は、短成分が 2.0nsec、長成分が 13.1nsec となった。主成分は短成分なので、Tb 原子核の励起状態の寿命 8nsec よりも高速な発光時定数 2nsec が得られた。よっ

て、十分な効率で第 1 信号と第 2 信号が分離できると考えられ、三重同時計測が可能であると期待できる。

3.6 α クエンチの測定

前節の結果から、三重同時計測の可能性が見えてきた。しかし、低エネルギー領域では液体シンチレータに含まれる微量な放射性物質がバックグラウンドとなることが考えられる。一般に、液体シンチレータの発光量は粒子の種類とエネルギーによって決まるが、α 粒子の場合、β 粒子 (電子) の $1/10 \sim 1/20$ 程度にクエンチ (消光) される。(付録 B クエンチの原理 参照)

測定は、あらかじめβ 線でエネルギーキャリブレーションをしておき、Bi-Po 反応の際に生じるα 線 (7.69MeV) のエネルギーと比較することで、クエンチを求めた [34](付録 C 崩壊系列 参照)。

$$^{214}\mathrm{Bi} \longrightarrow {}^{214}\mathrm{Po} \longrightarrow {}^{210}\mathrm{Pb}$$
$$\beta : 3.26\mathrm{MeV} \quad \alpha : 7.69\mathrm{MeV}$$
(^{214}Po の寿命 $\tau = 236\mu\mathrm{sec}$)

セットアップは、図 3.11 のようにした。Rn source から発生した Rn を装置に引き込み、Rn バブリングした。

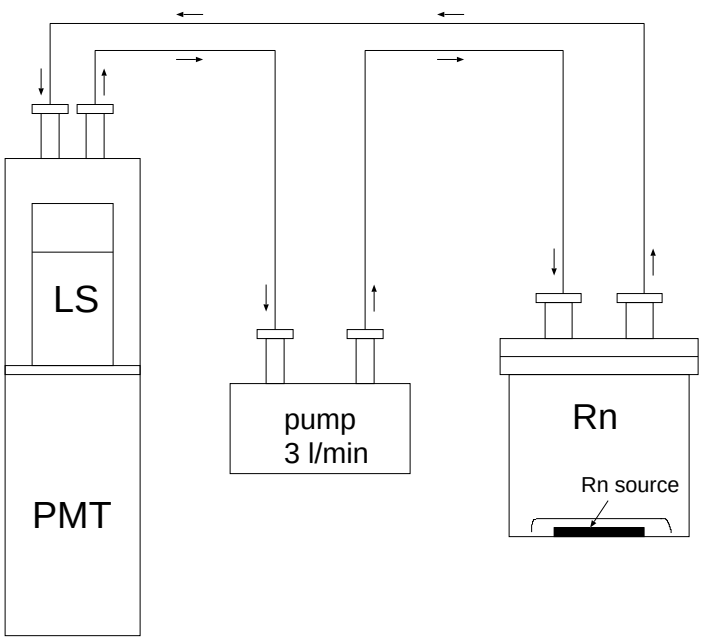


図 3.11: α クエンチの測定

この Rn の崩壊 (Bi-Po 反応) で生じる、prompt signal(β)、と delayed signal(α) を遅延同時計測した。prompt signal、delayed signal のエネルギー、2 つの signal の時間差 (^{214}Po の崩壊時間) の分布を図 3.12 に示す。$1.5 < \mathrm{promptsignal} < 2.5\mathrm{MeV}$、$30 < \mathrm{decaytime} < 300\mu\mathrm{sec}$ の cut をした結果、確かに ^{214}Po の寿命 $\tau = 236\mu\mathrm{sec}$ に一致した。よって、この delayed signal はα のエネルギー分布を示している。

ここで、α クエンチングファクター Q を次のように定義する。

$$Q = \frac{\text{real} \quad \alpha \quad \text{energy}}{\text{visible} \quad \alpha \quad \text{energy}} \tag{3.13}$$

結果を表 3.7 に示す。

種類	real α energy(MeV)	visible α energy(keV)	Q
Gd(5%)	7.69	1045	7.36
KamLAND	7.69	577	13.3

表 3.7: α クエンチの測定

Gd(5%) と KamLAND 実験で使われている液体シンチレータを比較した。Gd(5%) の方が、一般的な液体シンチレータ ($Q = 10 \sim 20$) に比べ、α クエンチが小さいことが分かった。次節でも述べるが、これは硝酸 Gd による化学クエンチとα 粒子の電離クエンチの競争によって理解できる。次章では、ここで求めたクエンチングファクターを使って、バックグラウンドを詳しく調べることにする。

3.7　粒子識別能の測定

前節で、ニュートリノイベントに対し放射性物質からのα 粒子がバックグラウンドになることを述べた。ここではさらに、発光の時間曲線の粒子による違いから粒子識別をする波形弁別 (Pulse Shape Discrimination PSD) について述べる。この PSD によって、液体シンチレータが粒子を識別できる能力を PSD 能と言う。これによってバックグラウンドを減らすことができる。

α 粒子とβ 粒子とでは、α 粒子の方が減衰するのに時間がかかる。(付録 A 発光機構 参照)
また、中性子でも同じような長い減衰時間が得られるが、エネルギー損失 dE/dx はα 粒子よりも小さいため PSD 能はより悪くなることが予想される。

PSD の測定には、図 3.13 のように波形の total charge と tail charge をそれぞれ測定して、その比を粒子によって比較するという方法を用いた [35]。initial delay とは、波形の立ち上がりから数えてどのタイミングで tail のゲートを開くかを表している。initial delay には、実際に測定して最も PSD が良くなる値が採用される。α 粒子は、前節と同じく Bi-Po 反応の際に生じたα 粒子、β 粒子は、^{60}Co からのものを使った。

結果を、横軸 total charge、縦軸 tail charge の 2 次元プロットとその比 (ratio=tail charge/total charge) の 1 次元のヒストグラムで示す。(図 3.14、図 3.15) この結果を用いて、粒子識別能を評価する。まず、我々がニュートリノイベントに必要なのはβ 粒子なので、β 粒子の検出効率 R_β が 90%となるように cut する。つまり、図 3.15 で 2 つのガウス分布でフィットされた関数をそれぞれ G_β、G_α とし、

$$R_\beta = \int_0^{cut} G_\beta(x)dx / \int_0^{\infty} G_\beta(x)dx = 0.9 \tag{3.14}$$

となる cut を求める。その cut に対して、α 粒子の混入率 R_α は

$$R_\alpha = \int_0^{cut} G_\alpha(x)dx / \int_0^{\infty} G_\alpha(x)dx \tag{3.15}$$

となる。R_α の値が小さいほど、バックグラウンド少なくなる。Gd(5%) では $R_\alpha \sim 4\%$ となったが、一般的な液体シンチレータ ($0.1 \sim 0.5\%$ 程度) に比べると少し大きめの値である。これは、普通の液体シンチレータでは小さかった化学クエンチが、不純物の硝酸 Gd によりα 粒子の電離クエンチに比肩するほどの大きさになったためであると考えられる。つまり、α 粒子による電離クエンチの影響が少なくなり、結果的に粒子の識別がしにくくなった。このことは、α クエンチが少なかったことと密接に関連し、また実験結果も対応づけられるものである。ただし今回の測定では、信号にノイズが見えていたので回路に問題があった可能性もあり、改善すればもっと良くなるかもしれないので今後の課題とする。

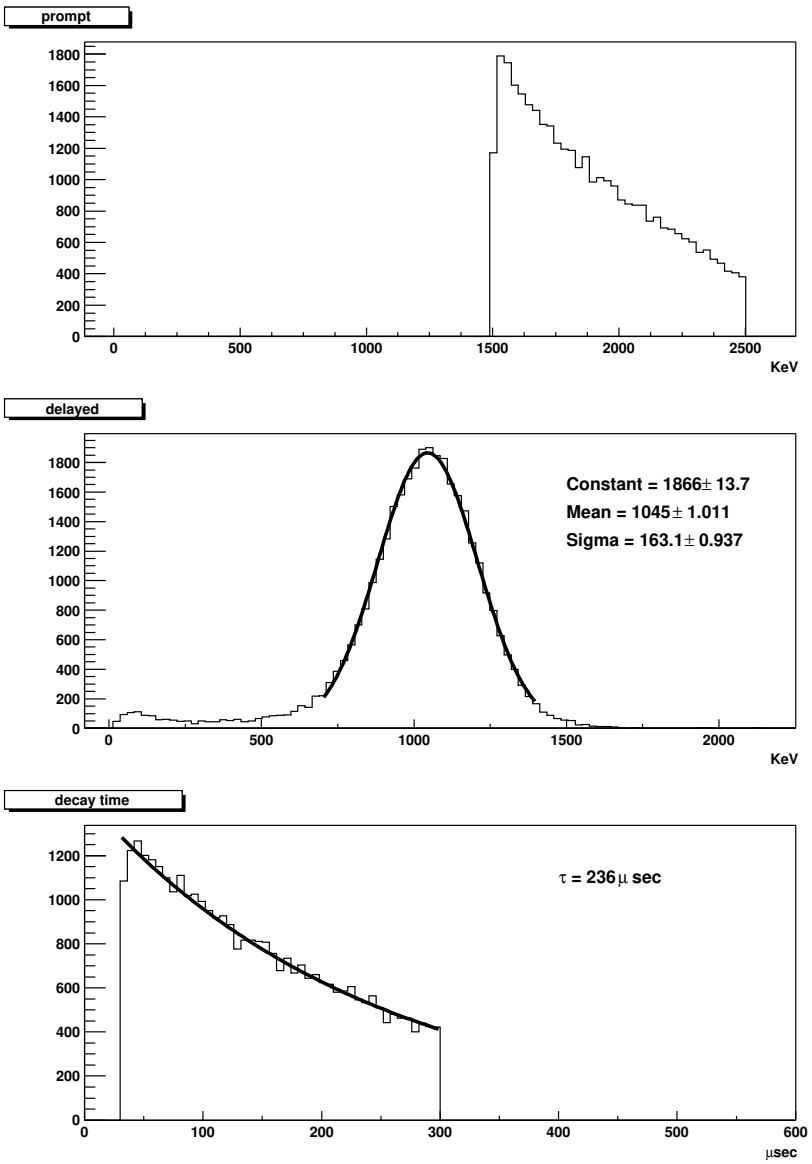


図 3.12: Gd(5%) の prompt signal、delayed signal のエネルギー、2 つの signal の時間差

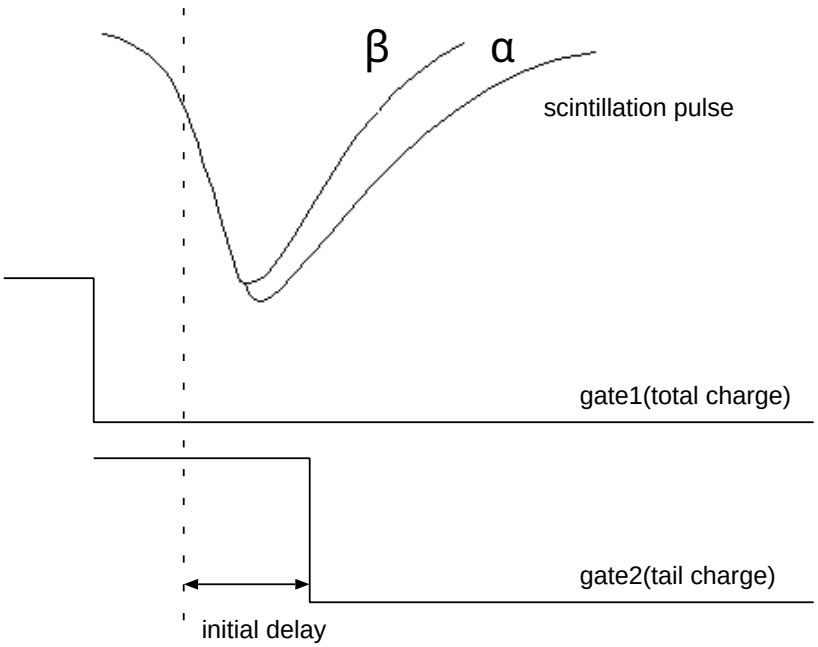


図 3.13: PSD の測定

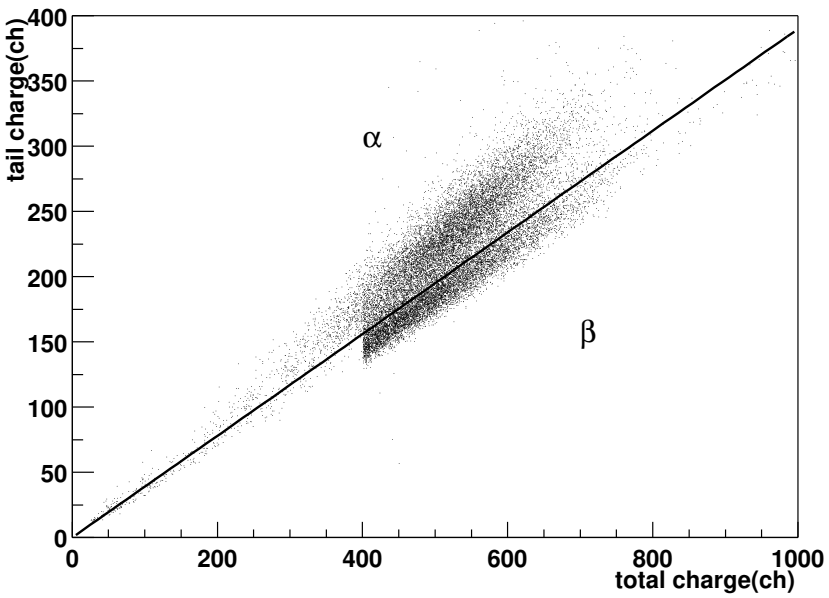


図 3.14: Gd(5%) のα /β 識別能 (tail charge):(total charge) の 2 次元プロット (initial delay=5nsec)

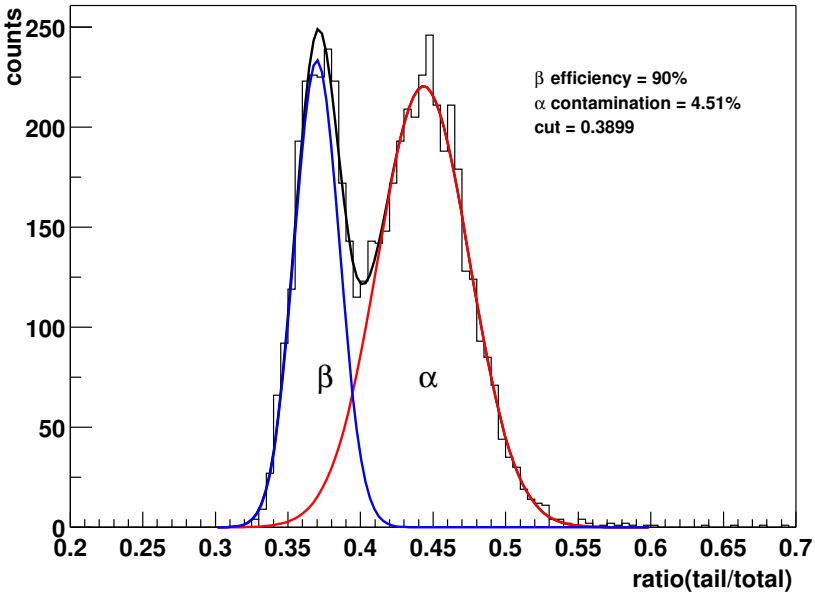


図 3.15: ratio(tail charge/total charge) の 1 次元ヒストグラム

第4章　性能評価

前章では、硝酸 Gd をシンチレータカクテルに 5%溶かした液体シンチレータの性能を調べた。ここでは、そのパラメータを使ってシミュレーションして性能の評価をする。

4.1　シミュレーションの設定

4.1.1　装置の設計

まず、装置の大きさを決める。装置の大きさを決めるときは、液体シンチレータの減衰長だけではなく、バックグラウンドも考慮しなければならない。^{152}Gd のα 崩壊によるバックグラウンドを避けるため、装置を細分化して偶発同時計測を減らす必要がある。ここでは、$1 \times 1 \times 1$m の装置を仮定した。(図 4.1) このとき、10tonGd では約 200 個の装置を必要とする。

PMT には、浜松ホトニクス製の R1408(ϕ8 インチ、TTS∼1.5nsec) を使用し、装置の全表面積の 50%をカバーしているとする。また、再発光は 100%して長波長側にシフトし、装置内の反射などは無視するものとする。

4.1.2　ニュートリノ信号の発生

ここで発生させるニュートリノ信号は、我々の最大の目標である pp、^{7}Be ニュートリノである。ここで、ニュートリノ信号のエネルギースペクトルを求める必要がある。これは、太陽ニュートリノのフラックス ($f(E_\nu)$) とその相互作用 ($\sigma(E_\nu)$) の積で表せる。

$$R(E_\nu) = f(E_\nu) \times \sigma(E_\nu) \tag{4.1}$$

原子核のニュートリノ捕獲反応の相互作用は、次のように書くことができる。

$$\sigma(E_\nu) = \frac{G_F^2}{\pi} \cos^2\theta_c \sum_i |M_i|^2 E_e (E_e^2 - m_e^2)^{\frac{1}{2}} F(Z, E_e) \tag{4.2}$$

$$|M_i|^2 = B(F) + \frac{g_A}{g_V} B(GT) \tag{4.3}$$

$$g_V = G_F \cos\theta_c \tag{4.4}$$

G_F	Fermi 結合定数
θ_c	Cabibbo 角
$\|M_i\|$	核行列要素
m_e	電子質量
$F(Z, E_e)$	Fermi 関数
g_A	axial-vector 結合定数
g_V	vector 結合定数

これによって、pp、^{7}Be ニュートリノ反応のエネルギースペクトルが求まる。(図 4.2)

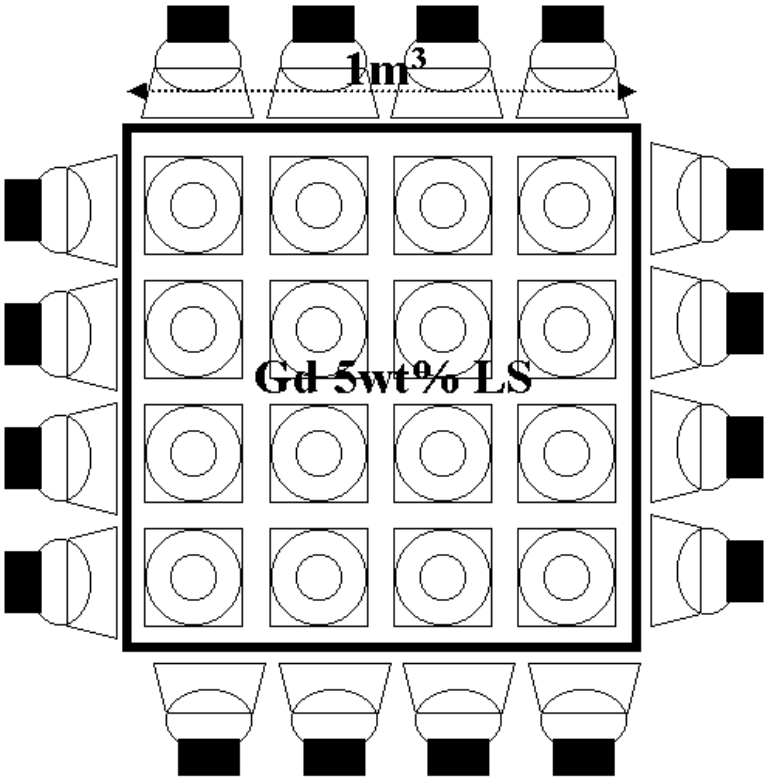


図 4.1: シミュレーションで仮定した実験装置

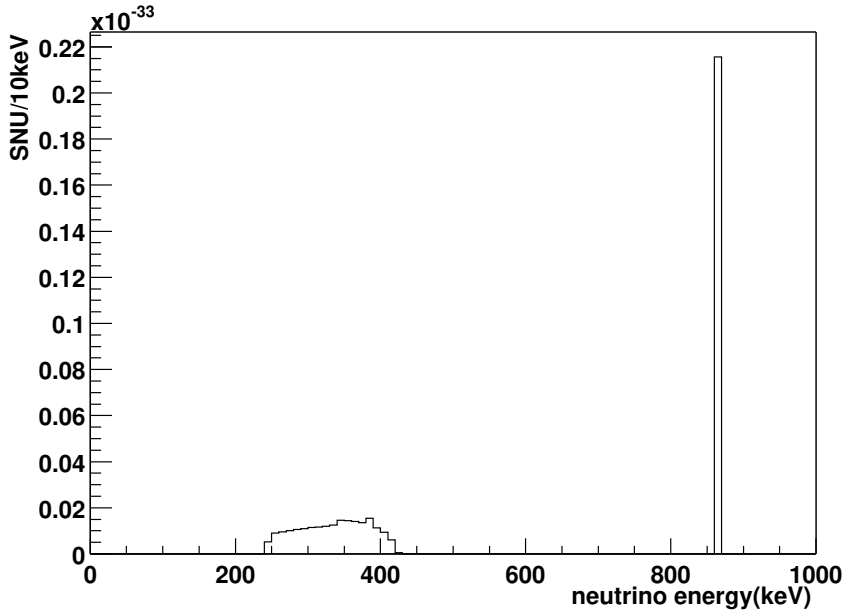


図 4.2: pp、^{7}Be ニュートリノ反応のエネルギースペクトル

この条件を使って、ニュートリノ信号を発生させた。(図 4.3) この pp、^{7}Be ニュートリノともに 3 つの連続した信号が見えていることが分かる。^{7}Be ニュートリノは、第 1 信号のエネルギーが高いので、pp ニュートリノに比べ第 2 信号が見えにくいことが分かる。時定数の長いシンチレータの場合、減衰曲線によって次の信号、特に第 2 信号の分離が困難であった。しかし、我々の開発した液体シンチレータは時定数が短いため 3 つの信号を分離することが可能になった。

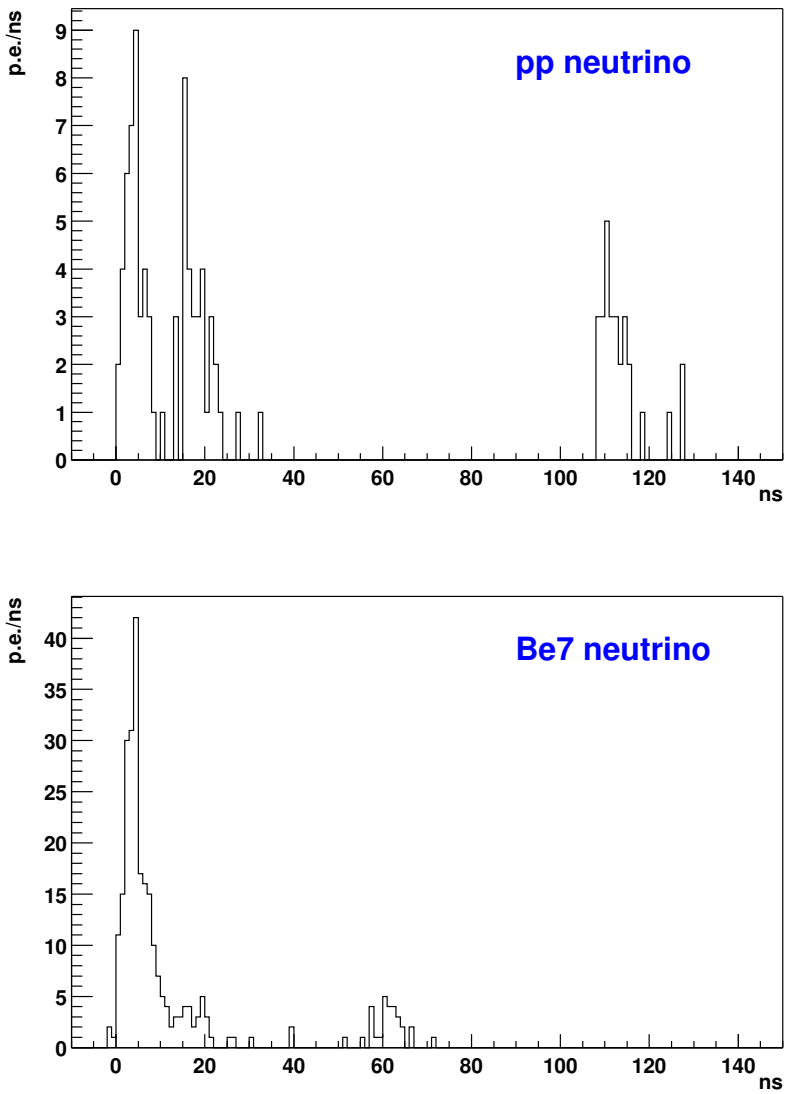


図 4.3: pp、^{7}Be ニュートリノイベント

4.1.3　ニュートリノ信号の分離

3 つの信号が分離できることを確認した。ここでは、実際にニュートリノ信号をフィットして、ニュートリノ信号が分離できることを確認する。第 2、3 信号は、励起寿命が 86.5nsec と発光時定数 2nsec に比べ十分に短いためほぼ分離できるので、ここでは励起寿命 8nsec の第 1、2 信号の分離だけを考える。

フィッティングには最尤法を用いた。第 1、 2 信号の全 photon 数に対する比を E_1、E_2、時間差 ΔT とすると ($E_1 + E_2 = 1$ で規格化)、パラメータは E_2、ΔT の 2 つである。図 4.4 に pp ニュートリノを発生させて、フィットした結果を示す。

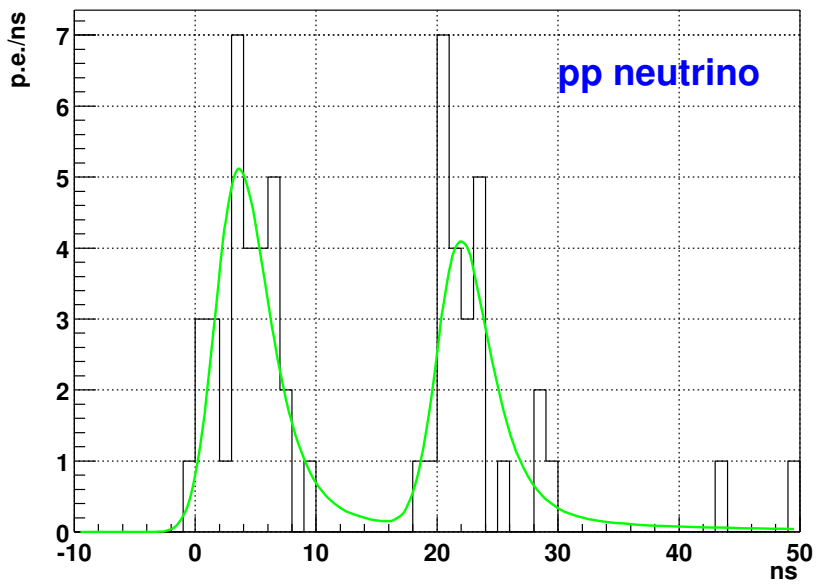


図 4.4: pp ニュートリノ信号の 2signal のフィット

4.2 バックグラウンドの研究

液体シンチレータの性能を評価する上で、バックグラウンドは非常に重要である。開発された液体シンチレータが現実的なものかどうかは、ニュートリノ信号に対してバックグラウンドがどの程度あるかによって決まる。

4.2.1 ニュートリノ信号のバックグラウンド

バックグラウンドには、液体シンチレータ内部以外からの外部バックグラウンドと液体シンチレータ内部からの内部バックグラウンドとがある。外部バックグラウンドの原因としては、宇宙線、環境γ 線などが考えられるが、検出器を地下深くに置いたり、VETO シンチレータを使用することで問題ないレベルになる。内部バックグラウンドは、液体シンチレータ中に含まれる放射性物質が原因となる。しかし、我々はニュートリノ信号を 3 重同時計測をするので通常の崩壊は問題とならない。ニュートリノ信号に対し問題となるのは、頻度の高い崩壊と時間相関のある崩壊である。そのようなバックグラウンドとして、主に次の 3 つがある [30]。

(1) ^{152}Gd のα 崩壊が 2 つの信号に見えてしまう。

(2) ^{235}U 起源の時間相関のある崩壊

(3) ミューオンによる原子核破砕で生じる時間相関のある崩壊 ^{159}Eu、^{157}Eu

まず、(1) について考察する。^{152}Gd は、図 4.5 に示すようなα 崩壊をする。これは、^{152}Gd の天然存在比を考えると 10tonGd では 15kHz と大変高い頻度の崩壊となる。 この

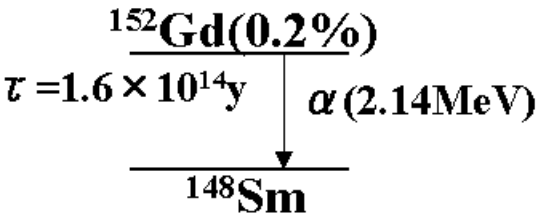


図 4.5: ^{152}Gd の崩壊図

α 崩壊はクエンチによって、pp ニュートリノのエネルギー領域で観測される。クエンチ量を求めるために、前章で求めたα クエンチングファクター $Q(7.69\mathrm{MeV}) = 7.36$ を使う。一般に、重粒子の発光量 L は

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S(dE/dx)}{1 + kB(dE/dx)} \tag{4.5}$$

で表せる [36]。(付録 B クエンチの原理 参照)
エネルギー損失 dE/dx は、入射粒子の運動量の関数となるので数値シミュレーションに

よって、粒子の飛程と発光量が求まる。今、$E_\alpha = 7.69\mathrm{MeV}$ での Q が分かっているので

$$\int_0^{X_\alpha} \frac{S(dE/dx)_\alpha}{1+kB(dE/dx)_\alpha}dx \Big/ \int_0^{X_\beta} S(dE/dx)_\beta dx = \frac{L_\alpha}{L_\beta} = Q \tag{4.6}$$

から kB が求まる。(X:入射粒子の飛程)

$$kB = 0.732\mathrm{mg}\cdot\mathrm{cm}^{-2}\cdot\mathrm{MeV}^{-1} \tag{4.7}$$

ただし、溶媒の平均原子質量を $\sim 5gmol^{-1}$ とした。このとき

α 飛程 $\cdots 9.23\mu\mathrm{m}/7.69\mathrm{MeV}$
β 飛程 $\cdots 1.26\mathrm{cm}/7.69\mathrm{MeV}$

であった。ここでは、$E_\alpha = 2.14\mathrm{MeV}$ での Q を求めたいので、式 (4.7) を (4.6) に代入して

$$Q = 20.35 \tag{4.8}$$

となった。(105keV 相当)

pp ニュートリノの最大エネルギーが、$E_\nu - E_{thre} = 176\mathrm{keV}$ として観測されるので、予想どうり pp ニュートリノスペクトル領域のバックグラウンドとなった。このバックグラウンドを抑える手段として、装置の細分化、三重同時計測、粒子識別などが考えられる。三重同時計測におけるバックグラウンドとして、次の 3 つがある。

(a) 偶発 3 重信号

(b) (偶発 2 重信号)+(1signal を 2signal と誤認)

(c) 1signal を 3signal と誤認

しかし、明かに (a)、(c) は (b) に比べてずっと小さいので、ここでは (b) だけを考えることにする。

偶発 2 重信号の発生率は

$$R = R_1 \times R_2 \times \Delta T/N_{seg} \tag{4.9}$$

となる。ここで R_1、R_2 はそれぞれ第 1 信号、第 2 信号の発生率、ΔT は同時計数に要求される時間幅、N_{seg} は実験装置の細分化される数である。ここでは、gate width=200nsec の 2 重同時計測、$20\mathrm{cm}\phi$ 以内の位置分解能を仮定すると

$$R \sim 5.94\times 10^4/\mathrm{year} \tag{4.10}$$

となり、さらに粒子識別により $5/100$ に減らせると仮定し

$$R \sim 2970/\mathrm{year} \tag{4.11}$$

と求まる。この偶発 2 重信号に対して、第 1 信号を誤って 2 つと見なしてしまう確率を $1/1000$ に抑えることができると仮定すると (b) は $3/\mathrm{year}$ 以下となる。これは、pp ニュートリノイベント $52/\mathrm{year}$ に比べ十分に小さい。

次に、(2) について調べる。^{235}U は、図 4.6 に示すような時間相関のある崩壊をする。305keV のβ 崩壊に続いて、寿命 65nsec で 84keV のγ 線を放出するため、これも pp ニュートリノ信号に対してバックグラウンドとなる。

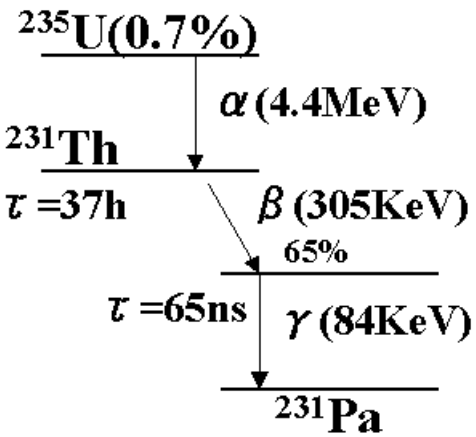


図 4.6: ^{235}U の崩壊図

この 2 重信号のうちの第 1 信号を誤って 2 つと見なしてしまう確率を前と同様に、1/1000 に抑えることができると仮定する。このとき、バックグラウンドを 5/year 以下と十分に小さくするためには、^{235}U の崩壊は 5,000/year に抑えなければならない。これから、^{235}U 量は 10^{-13}gU/g 以下としなければならないことが分かる。この点液体シンチレータ自体は 10^{-18}gU/g までの純化の前例があり、純化方法も確立されていると言えるが、我々の硝酸 Gd を含む液体シンチレータに対しては特別な純化が必要と予想される。

最後に (3) であるが、その頻度は fast ミューオンビームによるターゲットの放射化を測定した NA54 実験によって得られている。その結果によると、∼500/year 程度で三重同時計測で十分に小さくなる値である。

4.2.2　バックグラウンドの発生

主な 3 つのバックグラウンドを調べたが、どれも条件さえ満たせば三重同時計測、粒子識別などでニュートリノイベントに対し十分に小さくなることが分かった。しかしそのためには、第 1 信号を 2signal だと見なしてしまう確率を 1/1000 することが要求される。ここでは、バックグラウンド (1) のα 崩壊を発生させて 2signal のフィットをし、2signal と見なす確率を 1/1000 にする cut を求め、そのときのニュートリノ信号の検出効率を求める。

先に求めたように、(1) で発生したα 粒子のエネルギーは、クエンチによって 105keV となる。この値を用いて、1signal を発生させて 2signal のフィットをした。(図 4.7)

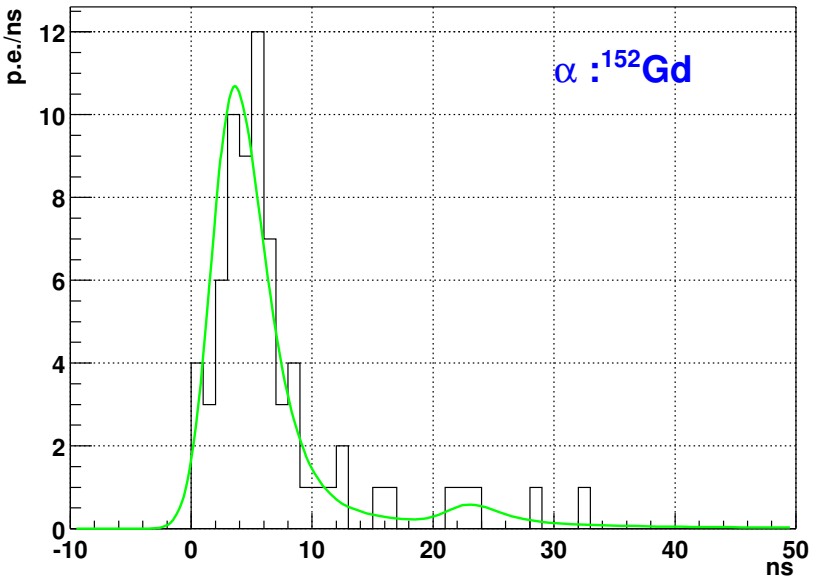


図 4.7: ^{152}Gd から発生するα 粒子の信号の 2signal のフィット

この結果を見れば、前に見た pp ニュートリノ信号との違いは明かであるが、統計的なゆらぎによってまれに良く似た信号になることがある。ここでは、そのような信号を 1/1000 にしなければならない。この信号と、ニュートリノ信号を大量に発生させて第 1 信号と第 2 信号の p.e. 数で 2 次元プロットした。(図 4.8) ただし、パラメータ $E2$、ΔT の範囲は

$$0 < E2 < 0.8$$

$$2 < \Delta T < 50\text{nsec}$$

とした。

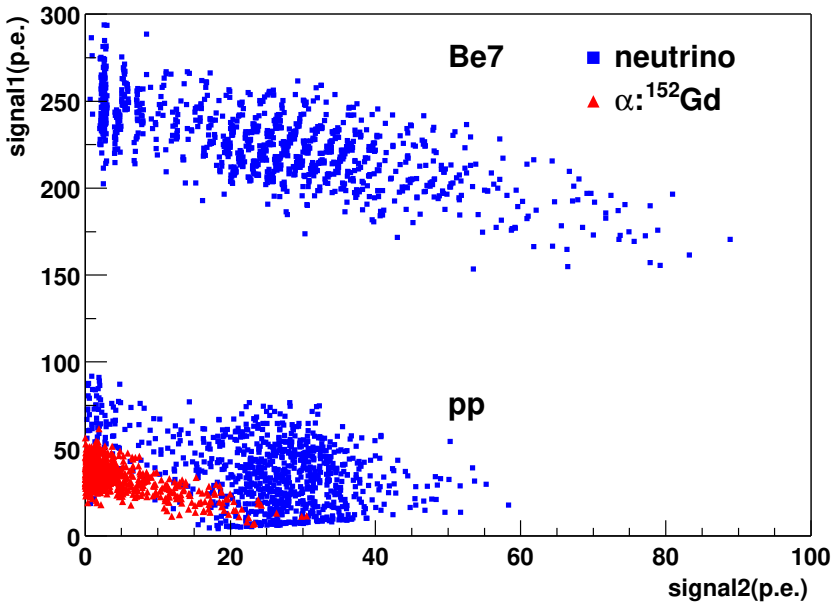


図 4.8: 第 1 信号と第 2 信号の p.e. 数の 2 次元プロット

^{152}Gd から発生するα 粒子の信号が pp ニュートリノの領域と少し重なることが分かる。この中からバックグラウンドだけを減らし、pp ニュートリノを残す効果的な cut を探さなければならない。まず、第 2 信号の p.e. 数での cut を考えるため、1 次元ヒストグラムにした。(図 4.9)

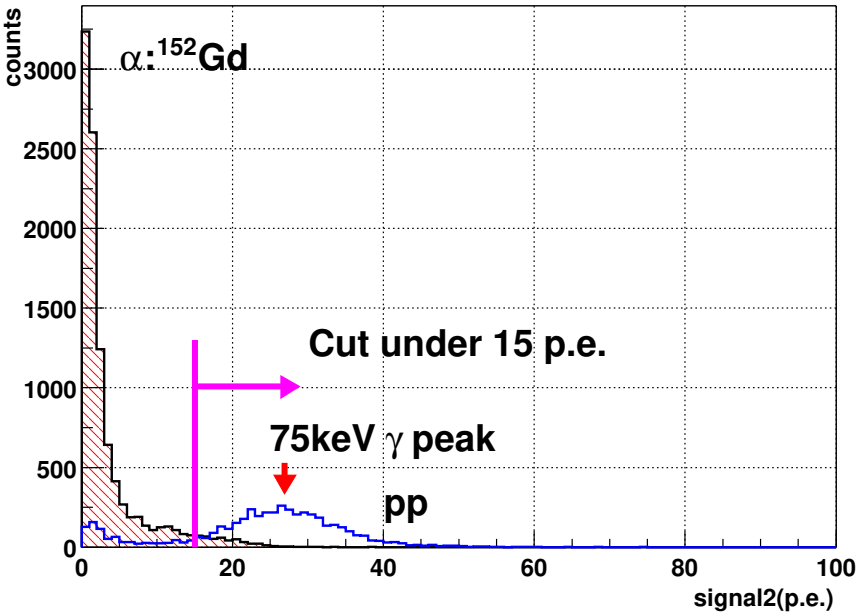


図 4.9: 第 2 信号の p.e. 数のヒストグラム

pp ニュートリノは、第 2 信号を持つため 30p.e. あたりにピークを持っているのに対し、第 1 信号しか持たない ^{152}Gd の信号では 0 付近にまとまった分布となっている。pp ニュートリノも 0 付近に小さなピークを持っているが、これは $2 < \Delta T < 50$nsec の範囲にないとき 1signal となるために起こると考えられる。signal2 を 15p.e. あたりで cut すれば、^{152}Gd の信号を大幅に取り除くことができる。この cut は、エネルギーの異なった他のバックグラウンドに対しても有益であると考えられ、非常に重要である。

さて、signal2 を 15p.e. あたりで cut した場合バックグラウンドは 4.5%まで減るが、目標の 1/1000 にするにはさらに cut が必要となる。そもそも、なぜ 1 つの signal なのに signal2 が大きな値を持つのかを考える。もし、図 4.7 のようなフィットであれば signal2 はそれほど大きくはならない。統計的に signal2 を大きくするようなイベントは全くと言っていいほど生じないからである。しかし、図 4.9 を見ると 40p.e. 近くまでのイベントがある。これは統計的な誤差ではなく、フィッティングのときに第 1 信号の一部を第 2 信号と誤って見なしたために起きることであると考えられる。これによって、signal2 の値を大きくしてしまう。この問題を解決するために、signal2 $>$ 15p.e. の cut をしたイベントに対して ΔT の 1 次元ヒストグラムを作った。(図 4.10)

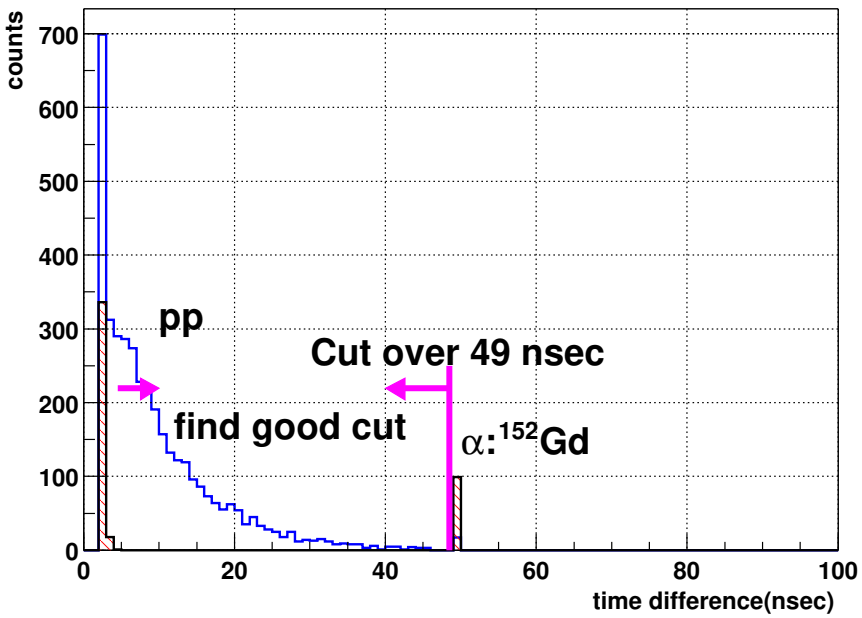


図 4.10: 第 1、2 信号の時間差のヒストグラム

このように、第 1 信号がある 5nsec 以下にバックグラウンドが集まっていることが分かる。これで 2signal の大きなイベントは、第 1 信号を誤って第 2 信号と見なしてしまうことによって起こることが確かめられた。ここで ΔT で cut をすることで、さらにバックグラウンドを減らすことができる。ちなみに 50nsec でピークが見えるのは、最尤法においてパラーメータの境界で尤度が偶然高くなる現象だと理解できる。このバックグラウンドは $\Delta T < 49$ の cut で効果的に除去できるが、5nsec 付近では pp ニュートリノのイベントも多いので、pp ニュートリノを減らしすぎないように適切な cut を考える必要がある。そこで、時間差の cut を変えていったときの両者の検出効率の変化を調べた (図 4.11)。すると 2nsec 付近でバックグラウンドが急激に減少していることが分かる。そして、バックグラウンドは約 3nsec の cut で目標の $1/1000$ に達している。なお pp の検出効率は 60%以上を保っているので、この cut はバックグラウンドに対してより厳しかったと分かる。ただし、pp ニュートリノの検出効率の誤差は、時間差の cut に対する減少率と時間差の測定誤差によって支配されるので、少なくとも 1nsec の精度の実験装置が必要とされる。一方、バックグラウンドは、この cut で pp ニュートリノに対し十分に少なくなるため、検出効率の誤差はあまり大きくならない。しかし、この cut は結果に大きく影響するので、十分にキャリブレーションをしておく必要がある。

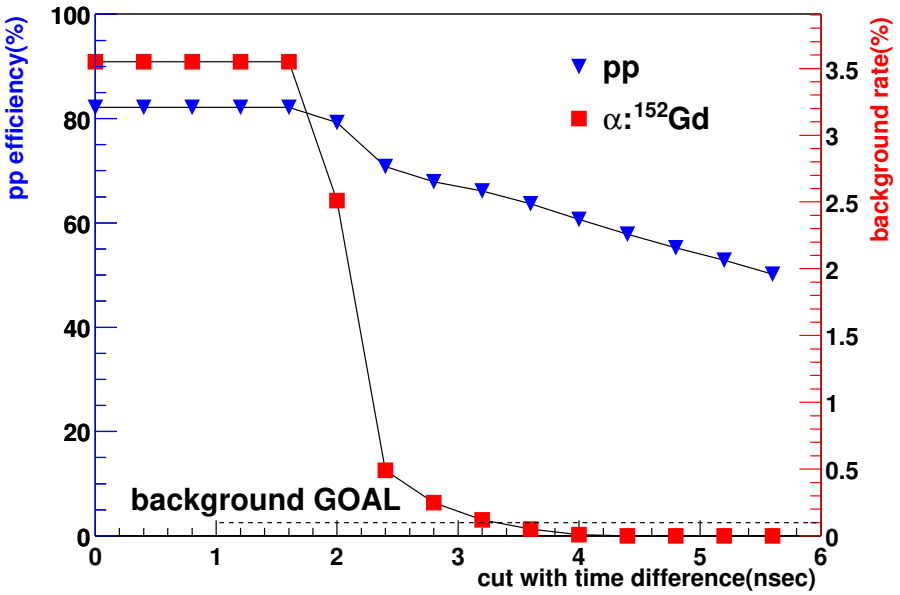


図 4.11: 時間差 cut の位置を変えたときの pp、バックグラウンドの検出効率の変化

このように、バックグラウンドは発光位置識別、粒子識別、同時計測、第 1 信号と第 2 信号の分離によって十分に減らせることが分かった。特に、第 1 信号と第 2 信号の分離がバックグラウンドの減少に強い効果を発揮することを確認できた。しかし、これらの識別には誤差が伴うので、検出効率を精度良く求めるには装置較正の必要がある。発光位置に対しては、線源を用いてエネルギーと共にキャリブレーションを行うことができる。また、粒子識別にはα 線源も必要となる。タイミングに関しては、各 PMT の時間分解能に支配されるが、走行時間に個別差もあるのでレーザーキャリブレーションでタイミングを合わせる必要がある。このような較正で、検出効率を正しく見積もることができると考えられる。

第5章　今後の研究課題

これまでのところで、低エネルギー太陽ニュートリノ検出器として非常に優れた性能を有するガドリニウム含有液体シンチレータが得られた事を述べた。今後、さらに調べる必要があるのは

- 長期安定性の確認
- 再発光の測定
- シミュレーションによる最適な装置設計
- コストの算定

などがある。

長期安定性については、前に述べたように界面活性剤を HS210 から NS210 に変えたことで数か月程度での変質を回避することができたが、NS210 も約 1 年で変色してしまうことが分かった。その後、酸化防止剤 BHT の使用により約 2 倍長持ちすることを確認した。しかし、短期間の使用を想定する実験ならいいが、ニュートリノ実験は統計量が必要なので最低でも 10 年間の性能の安定を保証したい。対策としては、酸を中和するための中和剤の添加や酸化されにくい界面活性剤を使用するなどが挙げられる。さらに、酸化防止剤を増やせばある程度の効果は期待されるが、PPO の濃度 5g/l よりも多い場合発光量の低下が予想される。また、透過率を下げることも予想されるので、現実的にはこれ以上の濃度は性能劣化につながる可能性がある。今後は、酸化防止剤の添加による性能の変化も含めて長期安定性を調べていく必要がある。

次に再発光であるが、これは一度発光された光が液体シンチレータ中を進む過程で発光溶質に吸収されて再び発光するもので、これによって光量の損失は減るが時間、位置の分解能を落す要因になりかねない。シミュレーションでは再発光率 100%にして行ったので、実際はもう少し分解能が良くなると思われる。

次にシミュレーションによる最適な装置設計をする必要があるが、今回のシミュレーションでは仮に $1 \times 1 \times 1$m の装置を設定したが減衰長、位置分解能の点からもあまり大きなサイズは考えにくい。また 10tonGd(5%) では $1 \times 1 \times 1$m の装置約 200 個、PMT 数約 20,000 個が必要とされるが、装置を小さくしてくと数が増えてコストが大きくなってしまう。シミュレーションで装置のサイズのパラメータを変えて、検出効率、価格などの変化を調べ最適なサイズを求める必要がある。

また、装置 (容器)、PMT、液体シンチレータ、硝酸ガドリニウムなどを含めたコストの算定が必要となる。硝酸ガドリニウムについては、Gd 化合物の中ではそれほど値段が高くなく LENS 実験で使われていた $Gd(EH)_3$ と比べても 1/10 程度の値段である [37]。(表 5.1) 液体シンチレータついては、有機溶媒、発光物質、界面活性剤を混ぜて自作したので

Gd 化合物	Gd1g 当たりの価格
$Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$	\$1.43
$Gd(EH)_3$	\$19.7

表 5.1: $Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O$ と $Gd(EH)_3$ の価格の比較 (少量購入時定価)

市販のものよりも安価なものが作れた。また、最適な装置数、PMT 数はシミュレーションによって求められるが、Gd 濃度をもう少し増やすことによって少なくすることができるかもしれない。最終的には、価格が現実的なものかどうかを時間スケールを踏まえて検討したいと思う。

第6章　まとめ

Davis らによる太陽ニュートリノ実験にはじまった太陽ニュートリノ問題は、最近の実験結果はニュートリノ振動の大混合角解 (LMA Large Mixing Angle Solution) を支持している。ニュートリノ振動パラメータは、KamLAND 実験によって精密に測定されることが期待されているが、混合角に対する感度は小さい。この測定に最も適したニュートリノ源の条件として、強くて誤差の少ないフラックスであることが挙げられる。そこで、混合角決定には約 1%の精度で強度が予測されている pp ニュートリノが適している。また、pp、^{7}Be ニュートリノはこれまでエネルギースペクトルで分離して測定した実験はなく、これらのニュートリノを見ること自体が重要な意味を持っている。

このような目的に適したニュートリノ検出用の原子核として ^{160}Gd があり、我々はこのガドリニウムを使った太陽ニュートリノ検出器の開発を行ってきた。これまで Gd_2SiO_5 結晶を用いた研究が行われたが、その発光時定数の長さのため三重同時計測のうちの第 2 信号を分離できず、バックグラウンド克服が困難となるため実現が難しかった。

そこで我々は、一般に時定数が短い液体シンチレータにガドリニウムを溶かすという手法をとることにした。ガドリニウム化合物が溶けるシンチレータカクテルという条件で、開発を進めたところ

ガドリニウム化合物

$$Gd(NO_3)_3 \cdot 5H_2O \quad \cdots 5\%(\text{Gd 重量比})$$

シンチレータカクテル

PseudoCumene(有機溶媒)	$\cdots 60\%$
NS210(界面活性剤)	$\cdots 40\%$
PPO(第 1 溶質)	$\cdots 5$g/l
Bis-MSB(第 2 溶質)	$\cdots 0.1$g/l

の組み合せで作製することができた。このとき、性能を測定した結果

- 発光量 $\sim 3,500$photons/MeV
- 減衰長 $\sim$39cm
- 時定数 $\sim$2nsec
- α クエンチ　Q $\sim$7.36/7.69MeV

- 粒子識別能 (PSD)　$\alpha \sim 4\%(\beta = 90\%)$

となった。これらの値を使って $1 \times 1 \times 1\mathrm{m}$ の装置を仮定してニュートリノ信号に対しシミュレーションをしたところ、三重同時計測が可能となる信号が得られた。このため、Gd_2SiO_5 結晶で問題となっていたバックグラウンドのうち $^{152}\mathrm{Gd}$ のα 崩壊によるものおよび原子核破砕による $^{159}\mathrm{Eu}$、$^{157}\mathrm{Eu}$ などは、三重同時計測によって十分低いレベルに抑えることが可能となった。$^{235}\mathrm{U}$ 起源の時間相関のあるバックグラウンドに対しては、第 1 信号を 2 つの信号と間違える確率として $1/1000$ を設定すると十分低いバックグラウンド量にするためには不純物としてのウラン量を約 $10^{-13}\mathrm{gU/g}$ 以下としなければならないことが分かる。現在進行中の KamLAND、Borexino などの実験では $10^{-16}\mathrm{gU/g}$ を要求しており、これに比べて非常に緩い制限である [38]。

また次の段階としては、長期安定性の確認、再発光の測定、シミュレーションによる最適な装置設計、コストの算定などを行わなければならない。硝酸ガドリニウムの価格に関しては、LENS 実験で使われた化合物 $\mathrm{Gd(EH)_3}$ に比べて $1/10$ 以下である。

このように、性能、価格の面において十分に競争力のある低エネルギーニュートリノの検出に適したガドリニウム含有液体シンチレータの開発に成功した。今後は、性能、価格、時間スケールを踏まえた実現可能性を考察していく予定である。

付 録A　発光機構

放射線励起による液体シンチレータの発光は次の過程で起こる。

(1) 放射線による溶媒励起

(2) 溶媒-溶媒間のエネルギー伝達

(3) 溶媒-溶質間のエネルギー伝達

(4) 溶質の発光

溶媒の主な役割は、放射線のエネルギーを吸収して励起して、溶質にその励起エネルギーを伝達することである。発光は溶媒でも起こるが、一般に溶質よりも発光の効率が悪いので、効率良く発光させるため上記のような過程を必要とする。

分子内の結合を担う電子には、その結合の仕方によって σ 電子 (角運動量 0) と π 電子 (角運動量 ± 1) がある。これらの電子は数 eV 程度で励起され、発光には π 電子が重要な役割を果たす。π 電子は不飽和結合を持つ分子中にあるため、液体シンチレータの成分には不飽和結合を持つ芳香族の物質が最もよく用いられる。

溶媒分子の励起

放射線が最終的に荷電粒子となって液体シンチレータ中を通過すると、主に圧倒的多数である溶媒分子を励起する。その結果、(a)π 電子一重項励起、(b)π 電子三重項励起、(c)σ 電子励起、(d) 電離、(e) 解離等が起こる。(a)、(b)、(d) は発光に寄与するが、(c) は熱エネルギー等になり、(e) は放射線損傷をもたらす。

溶媒-溶媒間のエネルギー伝達

このエネルギー伝達の機構として、衝突過程説とエクサイマー形成説がある。衝突過程とは、衝突に関係する両分子の電子軌道の重なりによる電子の交換相互作用によってエネルギーを移行する。この機構によるエネルギー移行は、溶媒の粘性や温度に関係があり、粘性の低下や温度の上昇によって起こりやすくなる。

一方、エクサイマーとは 2 つの同種分子が励起状態において会合してできたもので、このエクサイマーの形成解離を繰り返すことによりエネルギーが移行する。

これらのエネルギー移行は、溶媒分子の励起状態の寿命 (一重励起状態で数 $10\mathrm{nsec}$) より十分に短い時間 ($< 1\mathrm{nsec}$) で起こるため長距離の伝達が可能である。よって溶質のない純粋なキシレン等では、エネルギー移行を繰り返しても速く発光する溶質がないため、数 $10\mathrm{nsec}$ の発光の減衰時間を持つ。

溶媒-溶質間のエネルギー伝達

大きく分けて輻射的エネルギー移行と非輻射的エネルギー移行とがある。非輻射的エネルギー移行は、衝突過程、双極子-双極子相互作用等で起こると考えられていて溶質濃度が大きいときほど起こりやすい。一方、輻射的エネルギー移行は溶質濃度が非常に小さいと

きに起こりやすく、非輻射的エネルギー移行ができなかった溶媒分子が基底状態に落ちたときの発光を溶質が吸収することで起こる。溶質濃度を高くしすぎると、溶質の光の自己吸収によるクエンチ (濃度クエンチ) が起こり、低すぎると寿命の長い溶媒分子に対し不純物によるエネルギー損失の機会を多く与えることになるので、発光量を多くするには適当な溶質濃度が要求される。

溶質の発光

励起された溶質は、内部転換、蛍光放出、系間交差、燐光放出などで基底状態に落ちる。これらの過程の起こりやすさはそれぞれの過程の競合であり、それぞれの寿命がその割合を支配する。

内部転換は、光の放出を伴わない遷移で、$\sim 10^{-11}$ 程度の寿命を持つ。

蛍光放出は、一重項励起状態から基底状態への遷移の際に起こり、光の放出を伴う。寿命は $\sim 10^{-9}$ 程度である。発光スペクトルはこのエネルギー準位によって決まるが、分子振動による微細なレベルへの遷移のため、一般に広がりをもったスペクトルとなる。

系間交差は、一重項励起状態から三重項励起状態への遷移で、光の放出を伴わず、$\sim 10^{-8}$ 程度の寿命を持つ。寿命が比較的長いのは、この遷移がスピンの反転を伴う禁止された遷移であるためである。

燐光放出は、三重項励起状態から基底状態への遷移の際に光を放出するもので、遷移のエネルギー差が大きくスピンの反転を伴うので、$\sim 10^{-4}$ 以上と非常に長い寿命を持つ。

PSD

三重項励起状態の分子は、スピンの反転を伴う遷移で基底状態に移るため、一般にその寿命は長い。このため、2 つの三重項励起分子間で相互作用し、2 つの一重項励起分子を作ることがある。この一重項励起分子は蛍光放出に寄与するため、最終的には、三重励起分子同士の衝突の時間に支配されるような、発光減衰時間の長い蛍光が得られる。

α 粒子のようにごく狭い範囲を励起する粒子の場合、三重項励起分子の密度が増してそれらの分子同士の相互作用の確率が増すために、遅い成分の発光が増える。また、α 粒子のように電離能の大きい粒子では、速い成分のクエンチが大きい (付録 B クエンチの原理参照) ので、さらに減衰時間の長い発光となる。この粒子による波形の違いを利用して、粒子を識別する事を波形弁別 (Pulse Shape Discrimination PSD) と言う。液体シンチレータではこの違いが顕著であるため、PSD に適している。

付 録B　クエンチの原理

クエンチングの原因として、主に次のようなものがある。

(1) 化学クエンチング

放射線励起によって溶媒が励起し、そのエネルギーが溶質に伝達されるまでの過程で起こるエネルギーの損失を化学クエンチングと言う。これは溶質の発光以前に起こる現象で、主に物質の化学的性質によって決まる。

(2) 色クエンチング

溶質の発光スペクトルに重複するような吸収スペクトルを持つ物質が液体シンチレータ中に存在すると、生じた蛍光の一部が吸収されて色クエンチングが起こる。これは溶質の発光以後に起こる現象で、透過率を決める要因となっている。

(3) 酸素クエンチング

液体シンチレータ中に存在する溶存酸素に起因するクエンチングを酸素クエンチングと言う。酸素分子は強い電子受容性を持つために、励起一重項状態の溶媒分子とエキシプレックスを形成、解離し、その過程においてエネルギーが失われる。エキシプレックスとは、基底状態の分子と励起状態の分子との異なる 2 分子の会合によってできた 2 量子体のことである。このため、液体シンチレータ中の酸素を取り除くため、窒素ガスやアルゴンガスでバブリングする等の対策が採られる。

(4) 濃度クエンチング

溶質の濃度を増やしすぎると、逆に光量が減少してしまう。これは溶質が発光スペクトルに重複するような吸収スペクトルを持つときに、溶質が蛍光を自己吸収してしまうためである。

(5) 電離クエンチング

エネルギー損失の大きな粒子 (重粒子) が液体シンチレータ中を通過するとき、その道筋には電離、励起分子の密度の非常に濃いところができ、そのため蛍光効率が低下することを電離クエンチングと言う。このため、同じエネルギーでも粒子によって発光量が変わる。

電子のエネルギーと発光量の関係は

$$\frac{dL}{dx} = S\frac{dE}{dx} \tag{B.1}$$

と表せる。一方、重粒子では 1951 年に Birks はエネルギーと発光量の関係が

$$\frac{dL}{dx} = \frac{S(dE/dx)}{1 + kB(dE/dx)} \tag{B.2}$$

のようになると提案した。ここで kB(Birks constant) は、重粒子の種類によらない定数である。2 つの式から、α 粒子、中性子 (重粒子) などはβ 粒子 (軽粒子) の発光に比べクエンチが大きくなることが分かる。

エネルギー損失

物質中の入射粒子のエネルギー損失は、Bethe-Bloch 方程式で表せる。

$$-\frac{dE}{dx} = Kz^2\frac{Z}{A}\frac{1}{\beta^2}\Big[\frac{1}{2}\ln\frac{2m_ec^2\beta^2\gamma^2T_{max}}{I^2} - \beta^2 - \frac{\delta}{2}\Big] \tag{B.3}$$

M	入射粒子の質量	MeV/c^2
E	入射粒子のエネルギー γMc^2	MeV
T	運動エネルギー	MeV
m_ec^2	電子の質量	0.510998902(21)MeV
r_e	電子の古典半径	2.817940285(31)fm
N_A	アボガドロ数	$6.02214199(47)\times10^{23}\mathrm{mol}^{-1}$
z_e	入射粒子の電荷	
Z	媒質の平均原子番号	
A	媒質の平均原子質量	gmol^{-1}
K/A	$4\pi N_A r_e^2 m_e c^2/A$	$0.307075\mathrm{MeVg}^{-1}\mathrm{cm}^2$
I	平均励起エネルギー	数 eV
δ	密度の影響における電離エネルギー損失の補正	

ただし、β、γ は通常使われる運動の変数である。また、T_{max} とは一回の散乱で自由電子に落すことができる最大の運動エネルギーで質量 M、運動量 $M\beta\gamma c$ の粒子では

$$T_{max} = \frac{2m_ec^2\beta^2\gamma^2}{1 + 2\gamma m_e/M + (m_e/M)^2} \tag{B.4}$$

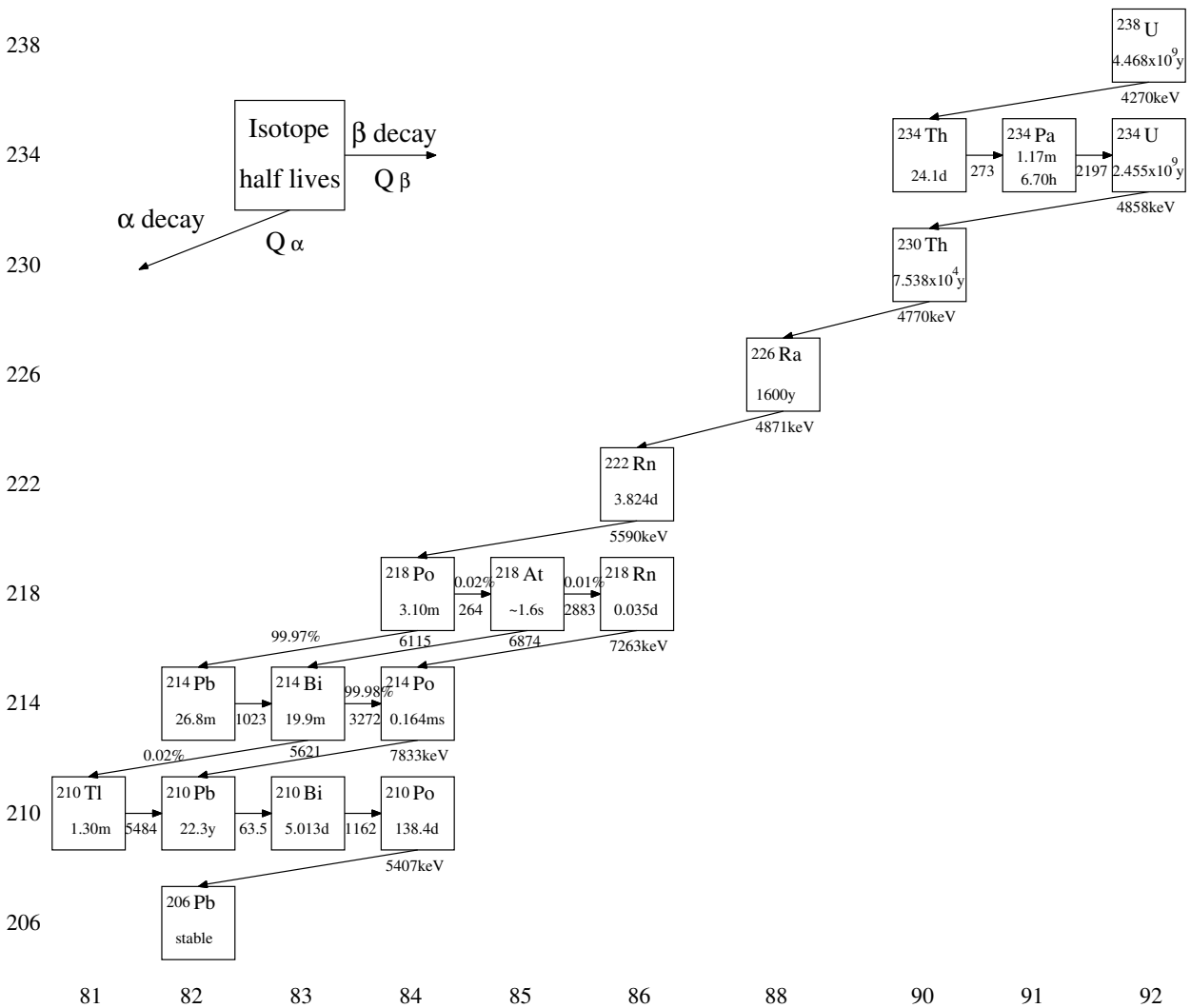
となり、運動エネルギーが低いとき $(2\gamma m_e/M \ll 1)$ の近似として

$$T_{max} = 2m_ec^2\beta^2\gamma^2 \tag{B.5}$$

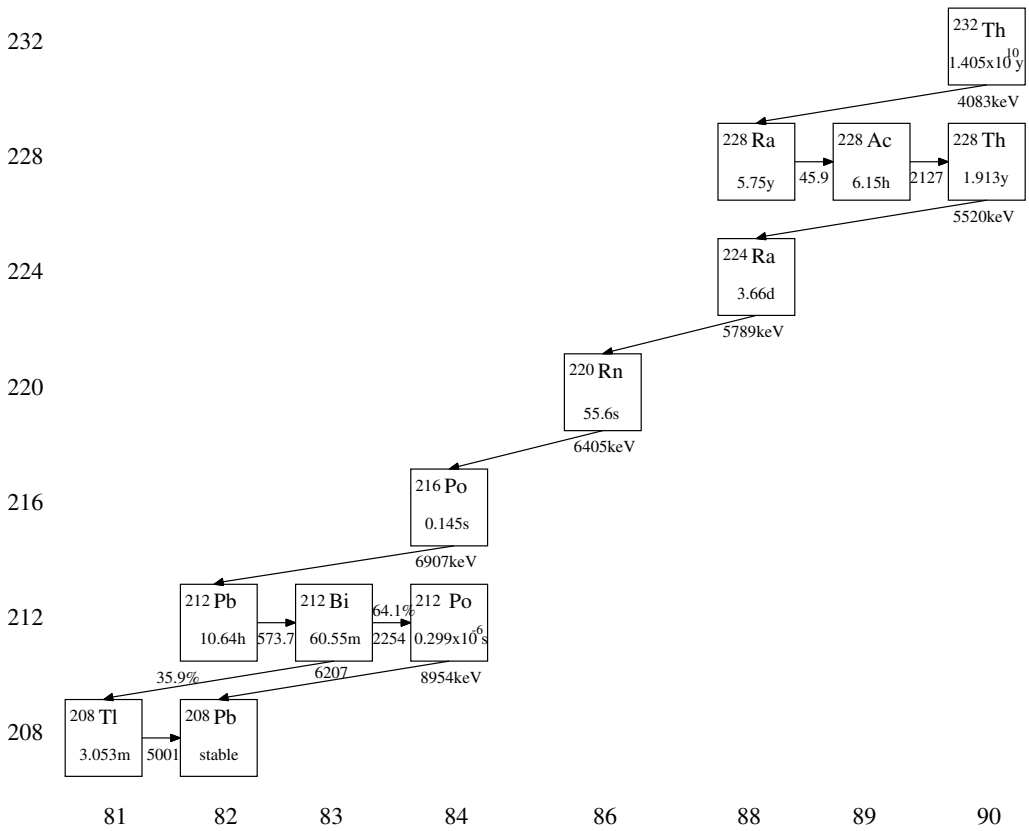
を使うことができる。

付 録C　崩壊系列

^{238}U 系列



^{232}Th系列


232
228
224
220
216
212
208
232 Th
1.405x10^10 y
4083keV
228 Ra
5.75y
45.9
228 Ac
6.15h
2127
228 Th
1.913y
5520keV
224 Ra
3.66d
5789keV
220 Rn
55.6s
6405keV
216 Po
0.145s
6907keV
212 Pb
10.64h
573.7
212 Bi
60.55m
64.1%
2254
212 Po
0.299x10^-6 s
35.9%
6207
8954keV
208 Tl
3.053m
5001
208 Pb
stable
81
82
83
84
86
88
89
90

Isotope	Energy (keV)	BR (%)	Isotope	Energy (keV)	BR (%)	Isotope	Energy (keV)	BR (%)
^{238}U	E_α		^{226}Ra	E_α		^{214}Bi	E_γ	
(4.468×10^9y)	4220	20.9	(1600y)	4685	5.55		609	43.7
	4270	79.0		4871	94.45		665	1.45
	E_γ			E_γ			768	4.61
	50	20.9		186	5.55		934	2.94
^{234}Th	E_β		^{222}Rn	E_α			1120	14.9
(24.10d)	86	2.9	(3.824d)	5590	99.92		1155	1.65
	106	7.6	^{218}Po	E_α			1281	1.46
	107	19.2	(3.10m)	6115	99.979		1377	3.77
	199	70.3	^{214}Pb	E_β			1402	1.55
	E_γ		(26.8m)	184	2.35		1408	2.85
	30	5.66		489	1.04		1416	1.00
	63	4.89		671	46		1509	2.17
	92	19.1		727	40.5		1661	1.06
	93	2.79		1023	9.3		1730	2.90
	113	2.19		E_γ			1847	2.06
^{234}Pa	E_β			242	1.07		2119	1.17
(1.17m)	386	1.55		295	39.5		2204	4.86
(6.70h)	415	8		352	46.5	^{214}Po	E_α	
	435	2.8	^{214}Bi	E_β		(164μs)	7833	99.99
	460	1.14	(19.9m)	790	1.45	^{210}Tl	E_β	
	474	45.4		824	2.74	(1.30m)	1379	2
	503	7.0		1068	5.54		1604	7
	644	19.4		1153	4.14		1238	5.92
	1002	1.1		1255	2.9		1859	24
	1069	2.9		1261	1.66		2024	10
	1106	1.12		1277	1.38		2414	10
	1173	3.9		1382	1.59		4205	30
	1208	4.8		1425	8.26		4386	20
^{234}U	E_α			1508	16.9	^{210}Pb	E_β	
(2.455×10^9y)	4805	28.42		1542	17.5	(22.3y)	17	84
	4858	71.38		1729	3.05		64	16
	E_γ			1894	7.18		E_γ	
	53	28.42		3272	19.9		47	84
^{230}Th	E_α					^{210}Bi	E_β	
(7.538×10^4y)	4702	23.4				(5.013d)	1163	100
	4770	76.3				^{210}Po	E_α	
	E_γ					(138.4d)	5407	100
	68	23.4						

表 C.1: ^{238}U 系列

Isotope	Energy (keV)	BR (%)	Isotope	Energy (keV)	BR (%)	Isotope	Energy (keV)	BR (%)
^{232}Th	E_α		^{228}Ac	E_γ		^{212}Pb	E_β	
(1.405×10^{10}y)	4018	22.1		58	74.1	(10.64h)	158	5.17
	4083	77.9		99	3.71		335	82.5
	E_γ			129	11.2		574	12.3
	64	22.1		209	4.05		E_γ	
^{228}Ra	E_β			270	4.43		239	82.6
(5.75y)	39	100		279	1.37		300	4.88
	E_γ			322	1.64	^{212}Bi	E_α	
	7	100		338	11.7	(60.55m)	6167	25.13
^{228}Ac	E_β			409	1.29		6207	9.75
(6.15h)	403	1.57		463	2.96		E_β	
	439	2.6		504	1.64		633	1.87
	444	1.18		509	1.37		741	1.43
	481	4.18		563	2.52		1527	4.36
	489	1.15		755	1.07		2254	55.46
	596	8.1		795	4.40		E_γ	
	959	3.54		836	1.49		40	25.6
	974	5.6		911	24.1		328	4.02
	1004	5.82		965	4.79		727	6.45
	1104	3.0		969	4.79		785	1.13
	1158	31.0		1631	1.97		1621	1.50
	1731	11.6	^{228}Th	E_α		^{212}Po	E_α	
	1940	1.9	(1.9131y)	5436	28.2	(299ns)	8954	100
	2069	10		5520	71.1	^{208}Tl	E_β	
				E_γ		(3.053m)	1040	3.09
				84	28.2		1292	24.5
			^{224}Ra	E_α			1526	21.8
			(3.66d)	5548	5.06		1803	48.7
				5789	94.94		E_γ	
				E_γ			277	2.66
				241	5.06		511	8.89
			^{220}Rn	E_α			583	30.0
			(55.6s)	6405	99.89		861	5.28
			^{216}Po	E_α			2616	35.3
			(0.145s)	6907	99.9981			

表 C.2: ^{232}Th 系列

参考文献

[1] J.N.Bahcall,S.Basu,and M.H.Pinsonnealt,and S.Basu,Astrophys.J.**555**(2001)990.

[2] Davis,Jr. *et al.*,Phys.Rev.Lett.**20**(1968)1205.

[3] B.T.Cleveland *et al.*,Ap.J.**496**(1998)505.

[4] W.Hampel *et al.*,Phys.Lett.**B447**(1999)127.

[5] M.Altmann *et al.*,Phys.Lett.**B490**(2000)16.

[6] J.N.Abdurashitov *et al.*,Phys.Rev.**C60**(1999)0055801.

[7] Y.Fukuda *et al.*,Phys.Rev.Lett.**77**(1996)1683.

[8] Y.Fukuda *et al.*,Phys.Rev.Lett.**86**(2001)5651.

[9] Q.R.Ahmad *et al.*,nucl-ex/0204008.

[10] Z.Maki and M.Nakagawa and S.Sakata,Prog.Theor.Phys.**28**(1962)870.

[11] L.Wolfenstein,Phys.Rev.D17(1978)2369,**D20**(1979)2634.

[12] S.P.Mikheyev and A.Yu.Smirnov,Yad.Fiz.**42**(1985)1441.

[13] M.Apollonio et al.,Phys.Lett.**B466**(1999)415.

[14] K. Hagiwara *et al.* (Particle Data Group).

[15] KamLAND Collaboration:hep-ex/0212021.

[16] 鈴木洋一郎, 日本物理学会誌 **57**(2002)171.

[17] Y.Fukuda et al.,Phys.Lett.**B436**(1998)33.;Phys.Rev.Lett.**81**(1998)1562.

[18] The LEP Collaborations and the LEP Electroweak Working Group, as reported by J. Mnich at the International Europhysics Conference, Tampere, Finland (July 1999).

[19] LSND Collaboration,Phys.Rev.**D64**(2001)112007.

[20] E.J.Chun, A.S.Joshipura,A.Yu.Smirnov,Phys.Rev.**D54**(1996)4645.

[21] K.Benakli,,A.Yu.Smirnov,Phys.Rev.Lett.**79**(1997)4314.

[22] N.Arkani-Hamed,S.Dimopoulos,G.Dvali,J.March-Russel,Phys.Rev.**D65**(2002)024032.

[23] B.Armbruster *et al.*,(LSND Collaboration),Phys.Rev.**D65**(2002)112001.

[24] Andrew O. Bazarko for the BooNE Collaboration:hep-ex/0210020.

[25] John N.Bahcall,M.C.Gonzalez-Garcia,Carlos Pena-Garay,hep-ph/0212147.

[26] P.C. de Holanda and A.Yu. Smirnov,hep-ph/0211264.

[27] R.S.Raghavan,Phys.Rev.Lett.**78**(1997)3618.

[28] M.Fujiwara *et al.*,Phys.Rev.Lett.**85**(2000)4442.

[29] 石河寛昭, 液体シンチレーション測定法 (南山堂).

[30] 石塚正基, 東京大学理学系研究科修士論文 (2001).

[31] ニッサンノニオンカタログ (日本油脂).

[32] I.B.Berlman,Handbook of Fluorescence of Aromatic Molecules(Academic Press, 1971).

[33] H.Gűsten,P.Schuster and W.Seitz,Journal of Physical Chemistry **82**(1978)459.

[34] T.Iwamoto,KamLAND-Note.A Measurements of α Quenching Factor for The KamLAND Liquie Scintillator(1999).

[35] 岩本敏幸, 東北大学理学研究科修士論文 (1997).

[36] D.E. Groom *et al.*,European Physical Journal **C15**(2000)1.

[37] STREM 社製化学薬品カタログ.

[38] J.Benziger and M.Johnson,N.I.M.**A417**(1998)278.