

修士論文

^7Be 太陽ニュートリノ検出のための
KamLAND 液体シンチレータの蒸留精製法の開発研究

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻
竹内 慎

平成17年

概要

現在 KamLAND ではニュートリノ振動の検証のために原子炉反ニュートリノの観測、地球内部の地殻やマントルから発生している地球ニュートリノの観測を行っている。そして次期計画として、太陽から来る ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノの観測を目指している。 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノを観測するためには、KamLAND 内の液体シンチレータに含まれる様々なバックグラウンドを除去する必要がある。

来年度 KamLAND では大型蒸留装置を KamLAND エリア内に建設し、不純物を除去することを決定している。本論文では、液体シンチレータ中の放射性不純物 (${}^{85}\text{Kr}$ 、 ${}^{222}\text{Rn}$ 、 ${}^{210}\text{Pb}$ 、 ${}^{40}\text{K}$) の蒸留精製法による除去率を、実験を行い測定した結果を記している。

${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測するために必要とされる放射性不純物の除去率は、

$${}^{85}\text{Kr} : 10^{-5} \sim 10^{-6}, {}^{222}\text{Rn} : \sim 10^{-3}, {}^{210}\text{Pb} : \sim 10^{-5}$$

である。

そして蒸留装置のテストベンチを用いて、液体シンチレータの蒸留を行い得られた放射性不純物の除去率は、

$${}^{85}\text{Kr} : < 1.3 \times 10^{-5}, {}^{222}\text{Rn} : \sim 10^{-3}, {}^{210}\text{Pb} : < 7.6 \times 10^{-5}$$

であった。この結果より KamLAND において ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測が可能であることを示した。

目次

第1章 序論	1
1.1 太陽ニュートリノ問題	1
1.2 標準太陽モデル	2
1.2.1 星の構造と進化	2
1.2.2 核融合反応	5
1.3 太陽ニュートリノ実験	8
1.4 ニュートリノ振動	10
1.4.1 真空中でのニュートリノ振動	11
1.4.2 物質中でのニュートリノ振動	13
1.5 低エネルギー太陽ニュートリノ観測の意義	15
1.5.1 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測の意義	15
1.5.2 CNO サイクルと pep 太陽ニュートリノ検出の可能性	17
第2章 KamLAND 実験	18
2.1 KamLAND 検出器	18
2.1.1 構造	19
2.1.2 光電子増倍管	20
2.1.3 エレクトロニクス	21
2.1.4 トリガー回路	22
2.1.5 現在の純化装置	23
2.1.6 solar phase における純化装置	24
2.2 ニュートリノ検出原理	26
2.2.1 反ニュートリノ検出原理	26
2.2.2 太陽ニュートリノ検出原理	28
第3章 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測におけるバックグラウンド	32
3.1 低エネルギー領域におけるエネルギースペクトル	32
3.2 放射性不純物	32
3.2.1 ${}^{238}\text{U}$ 系列	33
3.2.2 ${}^{232}\text{Th}$ 系列	34
3.2.3 ${}^{40}\text{K}$	34
3.2.4 ${}^{14}\text{C}$	35
3.3 空気から混入する放射性元素	36
3.3.1 ${}^{39}\text{Ar}$	36
3.3.2 ${}^{85}\text{Kr}$	37

3.3.3	^{222}Rn	38
3.4	ミューオンにより生成される放射性元素	40
第4章	蒸留精製法	41
4.1	液体シンチレータの純化方法と放射性元素の除去結果	41
4.2	蒸留法とその原理	42
4.2.1	蒸留法	42
4.2.2	液体シンチレータの性質	45
4.2.3	蒸留法による不純物の除去原理	48
4.3	蒸留装置	50
4.3.1	小規模蒸留装置	50
4.3.2	テストベンチ	51
第5章	液体シンチレータからの放射性希ガス元素の除去	54
5.1	蒸留法による Kr の除去	54
5.1.1	Kr の性質	54
5.1.2	Kr 測定系	56
5.1.3	小規模蒸留装置における除去率	61
5.1.4	テストベンチにおける除去率	63
5.2	蒸留法による Rn の除去	67
5.2.1	Rn の性質	67
5.2.2	Rn 測定系	69
5.2.3	小規模蒸留装置における除去率	76
5.2.4	テストベンチにおける除去率	78
5.2.5	様々なパラメータによる除去率への影響	80
5.2.6	除去率にたいする Rn 濃度の初期値による依存性	90
5.3	希ガス元素の除去率のまとめ	91
第6章	液体シンチレータからの放射性金属元素の除去	93
6.1	蒸留による Pb の除去	93
6.1.1	Pb の性質	93
6.1.2	Pb 測定系	94
6.1.3	小規模蒸留装置における連続蒸留による除去率	97
6.1.4	テストベンチにおける連続蒸留による除去率	100
6.2	蒸留による K の除去	103
6.3	金属元素の除去率のまとめ	104
第7章	結論	106
7.1	まとめ	106
7.2	将来計画	107
付録 A	KamLAND collaboration	109

付録B U,Th崩壊系列

110

付録C 放射平衡

112

第1章 序論

KamLAND(Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutrino Detector) 実験は、極低放射能環境下における超低エネルギーのニュートリノや反ニュートリノの検出によって、物理学、宇宙物理学、地球物理学の最重要課題の解明を目指すニュートリノ物理学の推進を目的としている。今までに KamLAND では、原子炉からくる反ニュートリノを検出し、99.995% の信頼度で $\bar{\nu}_e$ と $\bar{\nu}_\mu$ 間のニュートリノ振動を示し、30年に亘り存在してきた太陽ニュートリノ問題に終止符を打つとともに、ニュートリノ振動パラメータを精密に測定し、ニュートリノ振動解が LMA 解であることを検証した。また、地球内部のウランやトリウム の崩壊によって発生する地球反ニュートリノの検出に世界で初めて成功し、従来、地震波解析や隕石解析を用いて行ってきた地球内部の研究に新たな方法を示した。

そして、KamLAND では太陽からくるニュートリノフラックスの 14% を占める ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ検出を次期計画としており、これにより太陽標準理論 (Standard Solar Model) の検証を行うことができる。現在の KamLAND では ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノのスペクトルのある低エネルギー領域は、液体シンチレータ中に存在する放射性不純物がバックグラウンドとなり、観測することができない。そのため、液体シンチレータから放射性不純物を取り除くために様々な方法で実験が行われてきた。その中でも、本論文では最も効果のあった蒸留法における放射性不純物の除去について述べる。

以降、1章では本論文の目的である ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測に関する物理的背景とその意義について述べる。2章では KamLAND の検出器の構造やニュートリノ検出方法について述べ、3章では ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノを観測する際に、現在大きなバックグラウンドとなっている不純物について、個々の不純物の現状を記し必要とされる除去率の見積もりを記す。4章では、蒸留法による液体シンチレータ中の不純物のうち放射性希ガス元素である Kr(クリプトン)と Rn(ラドン)の除去について、5章では、蒸留法による液体シンチレータ中の不純物のうち放射性金属元素である Pb(鉛)と K(カリウム)の除去について述べる。そして6章で全体のまとめを行い、将来計画について述べる。

1.1 太陽ニュートリノ問題

我々に最も近い恒星である太陽について、1968年に太陽中心部で起こる核反応にともなうニュートリノの検出が Davis らによって初めてなされた。この実験において、太陽から地球に飛来する電子型ニュートリノのフラックスの予想値と観測値が大きく違うことが発見され、観測値が予想値の 1/3 しかないことがわかった。この食い違いが何に起因することなのか、ということが問題になった。これが太陽ニュートリノ問題の発端である。

もし Davis らの実験が正しく行われたものならば、これは、太陽からのニュートリノのフラックスを予想している標準的な太陽モデル、あるいは標準的な素粒子物理学のいずれ

かに修正がなされなければならないことを意味する。そのため、1968年の問題の発生以来、様々な太陽ニュートリノを観測するための実験や、標準的な太陽モデルの見直し、また新たな太陽構造を推測する方法の創造が行われてきた。1990年代には、太陽表面の固有振動数スペクトルの解析より太陽内部構造を精度よく決定する日震学の進歩により、この結果が次節で述べる標準的な太陽モデルとよく一致することがわかり、太陽ニュートリノ問題は素粒子物理学の問題であるという見解が有力になっていた。

そして現在では、このニュートリノの観測量の理論と観測の不一致の原因は、ニュートリノがわずかな質量を持つ場合に起こるニュートリノ振動であることがほぼ確実となっている。

以下この章では、1.2節では太陽ニュートリノフラックスを予測する標準太陽モデルについて、どのように構成されてその他の実験事実とどのように一致しているのかを確認する。1.3節では今まで行われてきた太陽ニュートリノ実験について、実験手法や実験結果についてまとめる。1.4節では、太陽ニュートリノ問題の解として考えられているニュートリノ振動について考える。1.5節では、1.2節から1.4節での議論を踏まえて本論文の目的である ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測の意義について述べる。

1.2 標準太陽モデル

直接観測できない太陽の内部構造を知るためには、すでに確立されている天体物理学の理論である星の内部構造と進化の理論を用いる。この理論によると太陽は中心で水素をヘリウムに変換する核融合反応でエネルギーを賄う星で、恒星としては平凡な星の1つである。中心温度が1500万度、中心密度が水の密度の150倍で核融合反応により中心の水素の約半分を消費した星である。

内部で核融合反応がおきているので、星の内部の化学組成は徐々に変化しており、化学組成の変化に伴い星の内部構造も変化していく。これを時間とともに追跡し恒星進化を、星の内部構造と進化の理論に基づき詳細な計算によって導いた理論的太陽内部構造モデルを「標準太陽モデル」とよぶ。

太陽モデルの構築のためには、原子核反応断面積、状態方程式、輻射吸収係数を評価し、これらの物理量に含まれる不確定要素を抑えることが必要である。この節では、標準太陽モデルの元となっている星の構造と進化の理論について触れ、星の内部で起きている核反応と標準太陽モデルから予測されているニュートリノフラックスについて述べる。このモデルは、対流の取り扱いと太陽誕生時の元素組成比をパラメータと残しており、また太陽の進化史を仮定している。現在のニュートリノフラックスの理論値はこのモデルから算出されている。

1.2.1 星の構造と進化

星に関する基本的諸量

星の構造と進化の理論は、後述する星のH-R図の再現、元素の起源の説明などの成功により、よく検証されている。まずは、観測事実からわかっている星に関する諸量につい

て述べる。もっとも基本的なものとしては、星の明るさと温度がある。

恒星の温度と星の明るさの関係を表す HR¹ 図を図 (1.1) に示す。これは観測した星を、明るさと温度よりグラフにプロットしていったものである。元々の HR 図は横軸にスペクトル型をプロットするが、星の温度と 1 対 1 に対応する尺度ならなんでもよいので、図では下の横軸が色指数で上の横軸に有効温度を用いている。縦軸には星の明るさを示す絶対等級を用いた。HR 図を作る際、星の絶対等級 (明るさ) と表面温度を知る必要がある。星の絶対等級を調べるには星までの距離を正確にも求める必要があるが、簡単には年周視差が測定可能な近傍の星を用いたりする。また、星の表面温度を調べるには星のスペクトルを観測し、さまざまな星の情報を分類して見積もる。星のスペクトル線の見え方は主に星の大気温度で決められるが、大気密度にもわずかに依存するので星の大気中の元素の化学組成という情報も得られることになる。

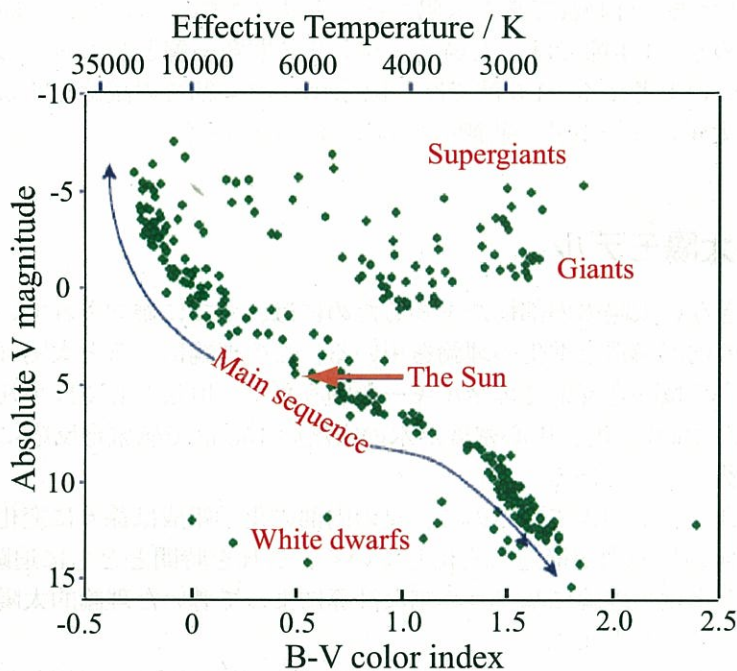


図 1.1: Hertzsprung-Russell diagram [22]

HR 図は、ほとんどの星が左上から右下に連なる列の上に集まっており、この列にある星のことを主系列星とよぶ。主系列星ではその中心部で後述する核融合反応を起きている、そこで発生したエネルギーと星の表面から出る光のエネルギーが釣りあっており、見た目上安定状態にある。星は進化によって明るさと表面温度を変えていくので HR 図上で移動していく。主系列星が多いのは、星がこの段階での寿命が長く、約寿命の 80% 程度を主系列星として過ごすためである。先に述べたように太陽はこの主系列星の中間に位置しており、寿命も半分ぐらいたっているといえる。図の右上にちらばっている星は、主系列段階を終えた後の星で太陽半径の数十倍から数百倍にも膨れた赤色巨星である。また左下のまばらに散らばった星は、白色矮星といい、半径が太陽の百分の一ほどの小さな星である。

¹Hertzsprung-Russell

白色矮星は巨星の段階で外層を吹き飛ばした後 HR 図上で左下にうつり、ゆっくりと冷えながら暗くなってゆく寿命を終えた星である。このように HR 図から星の進化の過程がよみとれる。

表 (1.1) に太陽に関する現在実験によって測定されてわかっている諸量や、実験結果より理論的に予測した値を示す。光度や温度についてはすでに述べたようにもとめられている。太陽の年齢については、隕石中のウランの同位体を用いた年代測定法により太陽系ができた頃の年代を見積もり、それを太陽の年齢と測定する方法が一般的である。

Parameter	Value
Photon luminosity (L_{\odot})	3.85×10^{33} erg/sec
Neutrino luminosity	$0.023L_{\odot}$
Mass	1.99×10^{33} g
Radius	6.96×10^{10} cm
Density	$1.41 / \text{cm}^3$
Effective(surface) temperature	5780 K
Average distance between earth and sun	1.496×10^{13} cm
Age	$(4.57 \pm 0.02) \times 10^9$ year
Fraction of energy from pp chain	0.984
Fraction of energy from CNO chain	0.016

表 1.1: 太陽に関する基本的諸量 ([2],[15])

恒星内部構造の方程式

次に星の構造を支配する方程式について述べる。物理法則を星の内部にあてはめ方程式を立て、それを解くことによって理論的に星の内部構造を求める。

恒星の平衡状態を記述するのは、静水圧平衡と熱平衡の 2 つの平衡条件である。静水圧平衡は、星内部のあらゆる点で星自身の重力と圧力勾配による力が釣りあっているという条件で、熱平衡は、星の表面から放射により失われるエネルギーを内部で生成される核融合エネルギーで賄っているという条件である。また、内部で発生するエネルギーは放射や対流により内部から表面へ運ばれ、これを熱輸送の条件という。星の重力は星をつくる物質自身から生まれるという自己重力の条件もある。これらを方程式の形で書くと、以下のようになる。

$$\frac{dp}{dr} = -\frac{GM_r}{r^2}\rho \quad (1.1)$$

$$\frac{dL_r}{dr} = 4\pi r^2 \rho \epsilon \quad (1.2)$$

$$\frac{dT}{dr} = -\frac{3\chi\rho}{4ac} \frac{1}{T^3} \frac{L_r}{4\pi r^2} \quad (1.3)$$

$$\frac{dM_r}{dr} = 4\pi r^2 \rho \quad (1.4)$$

式(1.1)は静水圧平衡条件で、運動量の連続方程式である。 p は圧力、 r は星内部での動径座標、 M_r はある半径 r より内側にある物質の質量、 ρ は密度である。同様に式(1.2)は熱平衡条件で、エネルギーの式を表し、 L_r は半径 r の球面を通過するエネルギー流速(光度)、 ϵ は星内部での核融合反応によるエネルギー生成率を示す。式(1.3)は熱輸送の条件で、エネルギー輸送の方程式を表し、 χ は物質の放射に対する不透明度(opacity)、 T は温度である。この熱輸送の式は、対流は想定せず、放射による熱輸送の場合の式である。式(1.4)は自己重力の条件で、質量の連続方程式を示す。

恒星の内部構造を解くというのは、これら4つの微分方程式について星の中心および表面での境界条件を満たすような解を求めることである。また、この方程式を解くには星の内部での物質の状態方程式も必要となる。標準太陽モデルはここで述べる方程式に、先ほど述べた太陽に関する量をいれ太陽の化学組成比とエントロピーのような値をパラメータとし、年代を区切りパラメータの値を変化させながら計算していき、求められるのである。

1.2.2 核融合反応

星の中での核反応として、4つの水素原子核(陽子)が1つのヘリウム原子核となってエネルギーを発生させる水素燃焼反応がある。クーロン障壁は原子番号の小さい原子核の方が小さく、水素燃焼が一番低い温度で起こる。実際の星の中では2つの連鎖的に起こる熱核融合反応過程が考えられる。一つ目はpp連鎖であり、二つ目はCNOサイクルである。

pp連鎖

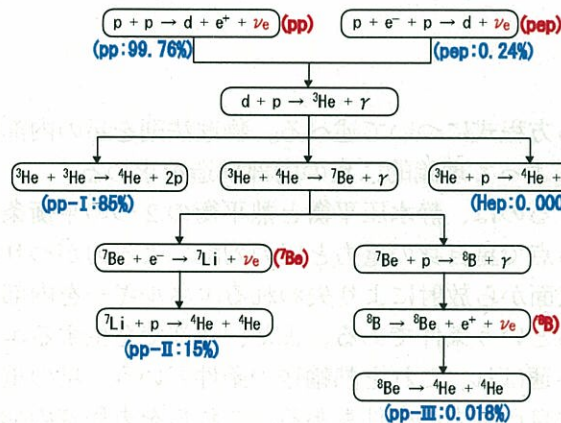


図 1.2: pp連鎖。温度によってそれぞれ進行する過程が異なる。

陽子と陽子の反応から始まる連鎖反応について、図(1.2)に示す。一番最初の反応で生成されるニュートリノが、ppニュートリノとpepニュートリノである。そのうち大部分はppニュートリノが占められるが、エネルギーが低いため検出が非常に難しい。pp連鎖には3つの分岐があるが、低温($0.8 \times 10^7 < T(K) < 1.4 \times 10^7$)では主にpp-I連鎖が起こる。太陽内部ではこのpp-I連鎖が支配的であり、pp連鎖のうち85%を占める。pp-II連

鎖は、 ${}^4\text{He}$ の組成比率が大きいか、温度が少し高い ($1.4 \times 10^7 < T(K) < 2.3 \times 10^7$) と、支配的になる。pp-II連鎖において、 ${}^7\text{Be}$ の電子捕獲の際に放出されるニュートリノを ${}^7\text{Be}$ ニュートリノと呼んでいる。さらに温度が高くなると ($2.3 \times 10^7 < T(K)$)、 ${}^7\text{Be}$ の陽子捕獲が起こり、pp-III連鎖が主となる。pp-III連鎖は太陽内部ではわずかな頻度でしか起きないが、連鎖の仮定で ${}^8\text{B}$ が ${}^8\text{Be}$ に変わる時発生する ${}^8\text{B}$ ニュートリノはエネルギーが高く比較的検出しやすい。これらの反応をまとめて式に表すと、



となる。 E_ν は発生するすべてのニュートリノがもちさるエネルギーを表している。

CNO サイクル

あらかじめC、N、Oなどの元素が星に含まれていると、 $T(K) > 1.8 \times 10^7$ 以上の温度では、陽子捕獲と β^+ 崩壊を通して、最終的に ${}^4\text{He}$ を形成する反応が起こる。これをCNOサイクルと呼ぶ。太陽においては、CNOサイクルで生成されるエネルギーは全体の1.6%を占める。図(1.3)にその過程を示す。

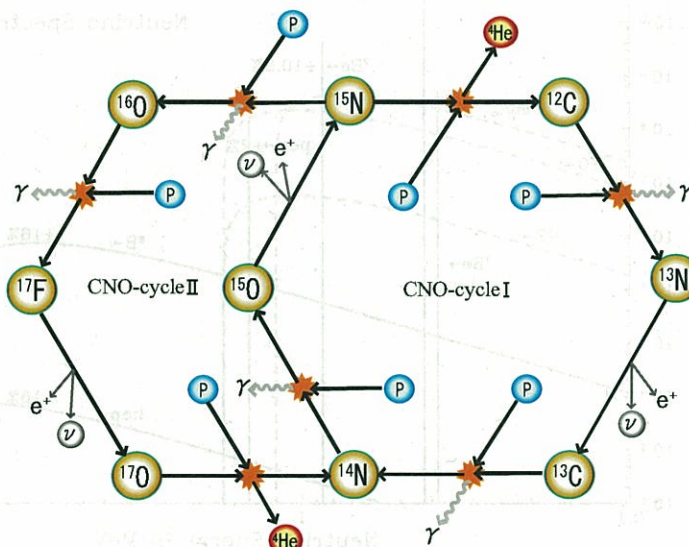


図 1.3: CNO サイクルで起こる反応。1サイクルの反応を通して4つの水素原子核が消費され1つのヘリウム原子核が作られる。

CNOサイクルは重い原子核が関与するので、やや高い温度を必要とし、太陽よりも重い主系列星のエネルギー源となるとともに、巨星の水素殻燃焼を担っている。温度が 1.6×10^7 (K)よりも低いときは図(1.3)で示すCNOサイクル1だけが働くが、温度がそれより高くなると ${}^{16}\text{O}$ も陽子と反応をするようになり、サイクルにバイパスができ、サイクルIIも稼動を始める。

CNOサイクルが働くと、元からある炭素、窒素、酸素の総量は変わらないがそれぞれの元素の混合比は変わる。CNOサイクルが定常状態に達した後、初めにあった炭素と酸

素のほとんどが窒素 (^{14}N) に変わり、通常の炭素 (^{12}C) とその同位体の ^{13}C との存在比が 5:1 ($^{12}\text{C} : ^{13}\text{C}$) になる。この混合比は CNO サイクルが止まった後もそのまま残る。実際に星のスペクトルの解析から、星の表面で窒素の量が炭素に比べて多く、また ^{12}C と ^{13}C の存在比が比較的小さくなっている星があることが知られている。

ニュートリノスペクトルとエネルギー発生率

図 (1.4) に、標準太陽モデルから予測される太陽内部での核反応で発生するニュートリノのエネルギースペクトルを示す。フラックスは地球軌道上での太陽ニュートリノフラックスである。太陽中心での核反応で発生するニュートリノのフラックスは、地球上で 1m^2 あたり毎秒 600 兆個になる。

ニュートリノの発生する反応によって、そのエネルギースペクトルは異なっている。pp 連鎖における最初の反応 $p+p \rightarrow d+e^+\nu_e$ は連続スペクトルであるが、 $e^-+^7\text{Be} \rightarrow ^7\text{Li}+\nu_e$ のような ^7Be ニュートリノを放出する反応は、2 体反応なので単色エネルギーとなる。

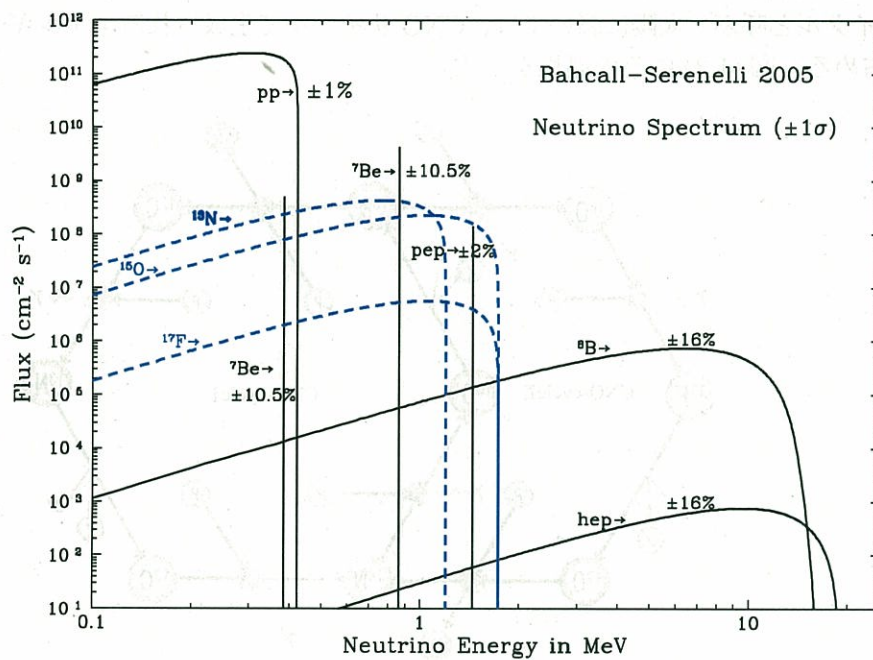


図 1.4: 標準太陽模型によって予測されるニュートリノのエネルギースペクトル。青い点線が CNO サイクルによって生成されるニュートリノで黒線が pp 連鎖によって生成されるニュートリノ。[21]

次に図 (1.5) に pp 連鎖と CNO サイクルの温度とエネルギー発生率の関係を示す。図は $10\text{g}/\text{cm}^3$ の密度のガスに対して、水素燃焼による 1 グラムあたりのエネルギー発生率が、温度によってどう変わるかを表したものである。グラフを見ればわかるように、星の中心温度が $18 \times 10^6 \text{K}$ より低いと pp 連鎖が支配的となり、それ以上だと CNO サイクルが支配的となる。太陽は中心温度が $15 \times 10^6 \text{K}$ 程度なので、すでに述べたように pp 連鎖が支

配的となっている。

全体のエネルギー発生率は温度の上昇に伴い急激に増加する。高温で CNO サイクルの寄与が大きくなるのは、この反応が比較的電荷の大きい原子核と陽子との反応であるので、クーロン反発力が強く、それを振りきり核融合を起こすために高温が必要だからである。

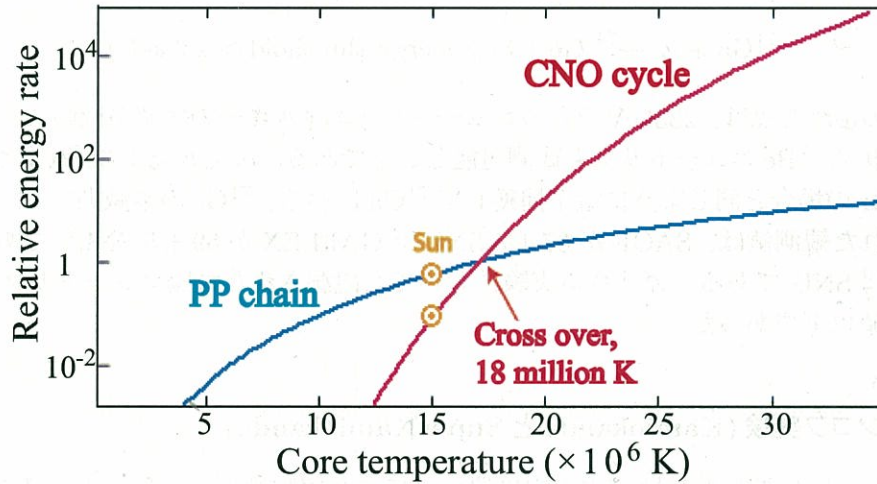


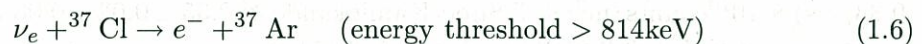
図 1.5: 核反応による 1 グラムあたりのエネルギー発生率 (erg/s), [26]

1.3 太陽ニュートリノ実験

この節では現在までに行われてきた主要な太陽ニュートリノ実験について述べる。

放射化学実験 (^{37}Cl 実験と ^{71}Ga 実験)

^{37}Cl を用いた Homestake 実験は、1960 年後半からアメリカのサウスダコタにある Homestake 金鉱の地下 1500m で行われた。直径 6m、長さ 15m の円柱の形をした検出器の中には、615 トンの C_2Cl_4 というドライクリーニングに使われる液体が入れられていて、太陽ニュートリノ (^8B と ^7Be) は以下の反応を用いて検出されている。



ν_e と塩素が反応し、半減期 34.8 日の放射性物質である ^{37}Ar が生み出される。1 か月に 1 度、検出器のタンクの中にヘリウムガスの泡を送りこみ、アルゴンガスも一緒に回収する。そしてこのアルゴンをチャーコールで吸着させ、アルゴン中の放射性同位元素 ^{37}Ar の数を測定する。 ^{37}Ar は半減期 34.8 日で K 軌道電子捕獲という β 崩壊で元の ^{37}Cl に戻るが、その際特性 X 線 (2.82keV) を放射する。この X 線を測定し、太陽ニュートリノフラックスを求める。図 (1.6) に示すように、1970 年からの 100 回以上もの実験結果より得られた

観測値が $2.56 \pm 0.23 \text{ SNU}^2$ であり、SSM から予想される値 $8.1_{-1.2}^{+1.2} \text{ SNU}$ に比べて 30% しかないことがわかる。

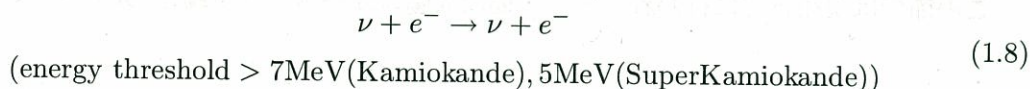
次に ^{71}Ga を用いた実験は 2 つあり、ヨーロッパのグループ (GALLEX 実験³) とロシアのグループ (SAGE 実験⁴) である。GALLEX 実験は、アルプスのグランサツトンネルの中に置いた 30 トンのガリウムを用い以下のような反応で太陽ニュートリノを捕まえている。(反応式と閾値は SAGE も同様である。)



この実験の優れた点は、233keV というニュートリノエネルギーの閾値が低いことより、pp ニュートリノ、 ^7Be ニュートリノも観測可能なことである。 ν_e と反応した ^{71}Ga が ^{71}Ge となり、 ^{37}Ar の場合と同じように電子捕獲して ^{71}Ga に戻る。 ^{71}Ge の半減期は 11.43 日である。得られた観測値は、SAGE が $67 \pm 5 \text{ SNU}$ で GALLEX が $69 \pm 5 \text{ SNU}^5$ であり、理論値は $126_{-7}^{+9} \text{ SNU}$ である。ガリウム実験においても観測された太陽ニュートリノフラックスは理論値以下であった。

水チェレンコフ実験 (Kamiokande と SuperKamiokande)

Kamiokande は岐阜県神岡鉱山の中に置かれていた実験装置で、現在 KamLAND のある場所で 1984 年から 1995 年まで稼動していた。この装置はもともと素粒子の大統一理論で予測されている陽子崩壊を検出するために建設された装置であったが、同時に天体からのニュートリノの測定にも適しており 1985 年頃から太陽ニュートリノの観測も始めていた。1987 年には大マゼラン星雲での超新星爆発を世界で初めて観測している。装置には 4500 トンの純水が蓄えられていて、ニュートリノが水中の電子と弾性散乱を起こし、跳ね飛ばされた電子が水中を光速より速く走ることによって生ずるチェレンコフ光を光電子増倍管で観測する。以下のような反応である。



この実験装置の優れた点は、ニュートリノを実時間で測定していること、ニュートリノの飛来する方向も確認できることである。Kamiokande のテクニックは、後継の SuperKamiokande に引き継がれ、SuperKamiokande は 50000 トンの体積と、より低いエネルギー閾値 (5.5MeV) を持つ。

結果として、測定されたニュートリノフラックスは Kamiokande が $2.80 \pm 0.19(\text{stat}) \pm 0.33(\text{sys}) \times 10^{10} \text{ counts/m}^2 \cdot \text{s}$ で SuperKamiokande が $2.35 \pm 0.02 \pm 0.08 \times 10^{10} \text{ counts/m}^2 \cdot \text{s}$ であり、理論値の半分程度ということを確認した。

²solar neutrino unit : 1SNU は 10^{-36} neutrino-capture/atom · sec

³GALLium EXperiment

⁴Soviet(現在では Russian) American Gallium Experiment

⁵GNO の結果も含んでいる。GNO は GALLEX の後継実験。

SNO

SNO⁶は、カナダにおける太陽ニュートリノ実験である。この実験では球体のアクリル容器にはいった 1000 トンの超純重水 (D₂O) を使用しており、リアルタイムの観測が可能である。アクリル容器の周りは純水 (H₂O) でシールドされている。SNO は以下の反応を通して ⁸B ニュートリノを測定する。(energy threshold > 6.75MeV)

$$\nu_e + d \rightarrow e^- + p + p \quad (1.9)$$

$$\nu_x + d \rightarrow \nu_x + p + n \quad (1.10)$$

式 (1.9) の荷電カレント反応⁷ は電子ニュートリノにのみ感度がある一方で、式 (1.10) の中性カレント反応はすべての活動するニュートリノに感度がある。荷電カレント反応は ⁸B 太陽ニュートリノのスペクトルの正確な測定を可能にする。2001 年に SNO は荷電カレント反応を通しての ⁸B 太陽ニュートリノフラックスの測定における最初の結果を公表しており、これは予測されているスペクトルと一致していた。中性カレント反応の信号は重水素の中での中性子捕獲による、6.25MeV の γ 線である。捕獲効率と全体の γ 線のエネルギーの両方を増すために、2 トンの NaCl が実験の第二段階において重水に加えられた。

2002 年に SNO は中性カレント反応による ⁸B 太陽ニュートリノフラックス測定に関して結果を示した。中性カレント反応を通して測定されたフラックスは、図 (1.6) に示すように SSM 予測と一致している。中性カレント反応はすべての種類のニュートリノ (ν_e, ν_μ, ν_τ) に対して感度があるので、この結果は後述する太陽ニュートリノ問題の解として考えられているニュートリノ振動の存在を強く示唆するものである。

図 (1.7) に KamLAND による 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ⁸(左図) と、今までの全ての実験によって決定された 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (右図) を示す。また、図 (1.8) に今までの様々なニュートリノ実験によって制限されたニュートリノ振動パラメータに関するグラフを示す。図 (1.7) の右図をもっと大きな範囲で見た図になる。

1.4 ニュートリノ振動

ニュートリノ振動は、前述した太陽ニュートリノ問題を解決するために色々な模索がなされた中で生み出されたものである。ニュートリノ振動とは、ニュートリノに質量が存在し、クォークと同様、3 種類のフレーバー固有状態 (ν_e, ν_μ, ν_τ) とその質量固有状態 (ν_1, ν_2, ν_3) がずれているならば、あるフレーバー固有状態で発せられたニュートリノが飛行中に別のニュートリノに変化する現象である。ニュートリノ振動の検出はニュートリノが質量を持っていることの証拠となる。素粒子物理学における現行の標準模型ではニュートリノに質量を与えていないので、ニュートリノ振動を観測することは重要な意味を持つ。

⁶Sudbury Neutrino Observatory

⁷荷電カレントと中性カレントについては 2.2.2 節に示す。

⁸振動パラメータについては次節に記す。

Total Rates: Standard Model vs. Experiment
Bahcall-Serenelli 2005 [BS05(OP)]

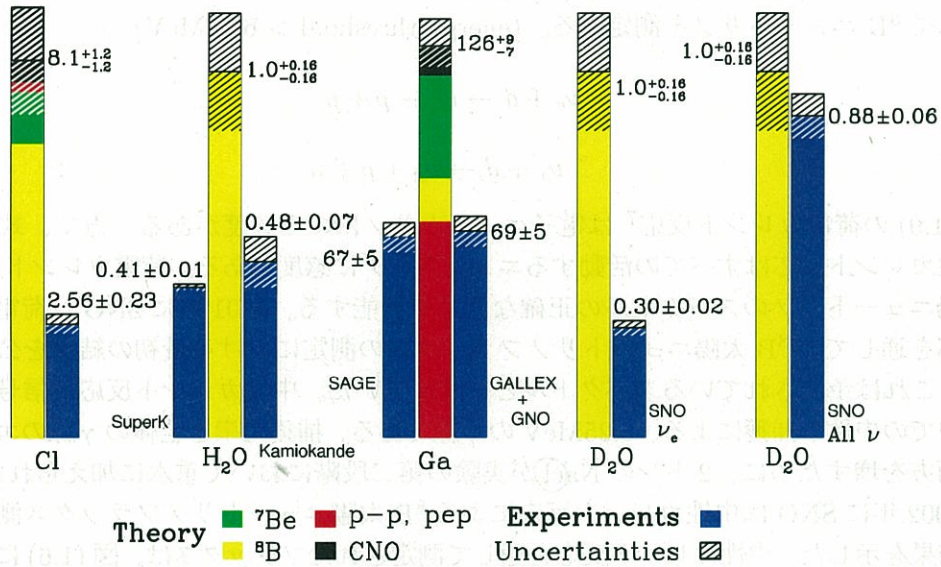


図 1.6: 太陽ニュートリノの予想値と観測値 (SSM BS2005 を使用)。[21]

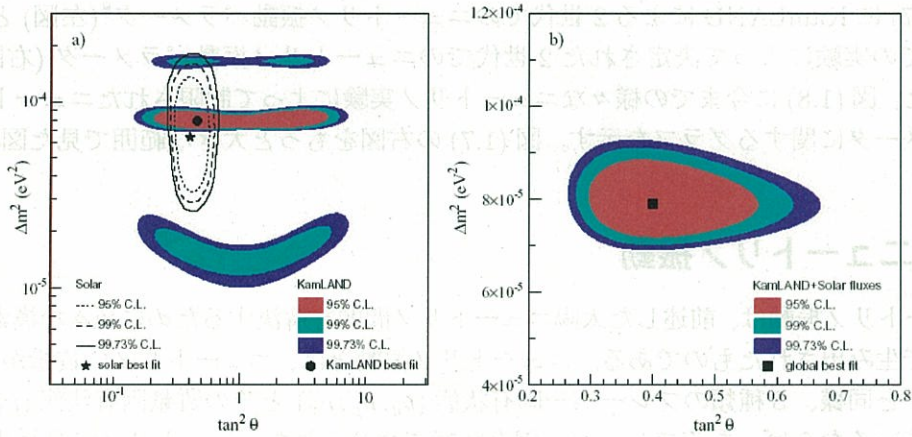


図 1.7: KamLAND による 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (左) と全ての実験によって決定された 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (右)[5]。最適値は、 $\Delta m^2 = 7.9^{+0.6}_{-0.5} \text{ eV}^2$, $\tan^2 \theta = 0.40^{+0.10}_{-0.07}$ 。

1.4.1 真空中でのニュートリノ振動

行列 U_{MNS} はレプトン混合行列 (または MNS 行列⁹ と呼ぶ) と呼ばれ、生成されるニュートリノ ($|\nu_\alpha\rangle$) とニュートリノの質量固有状態 ($|\nu_i\rangle$) を式 (1.11) のように関係づける。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}^* |\nu_i\rangle \quad (1.11)$$

⁹Maki-Nakagawa-Sakata 行列。クォークにおける混合行列は CKM (Cabibo-Kobayashi-Masukawa) 行列。

Total Rates: Standard Model vs. Experiment
Bahcall-Serenelli 2005 [BS05(OP)]

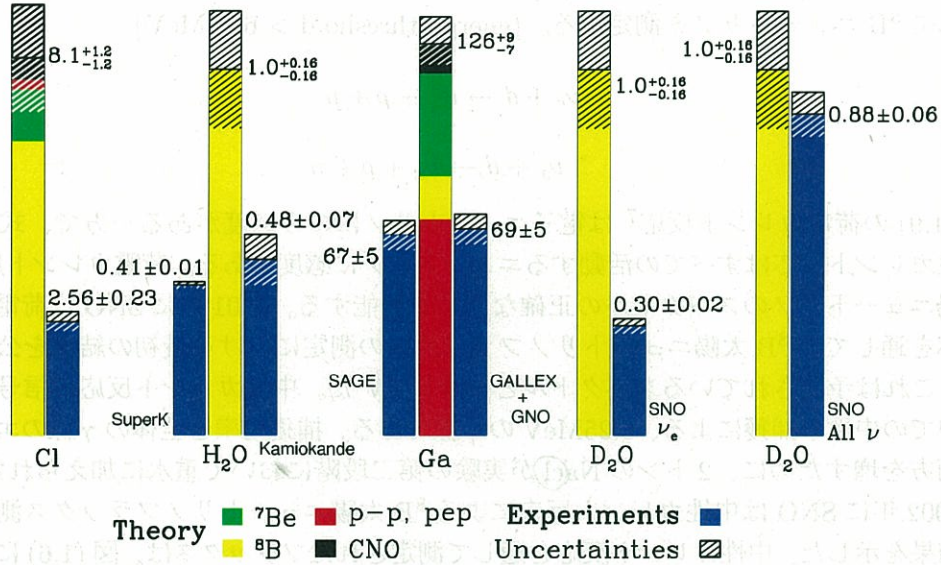


図 1.6: 太陽ニュートリノの予想値と観測値 (SSM BS2005 を使用)。[21]

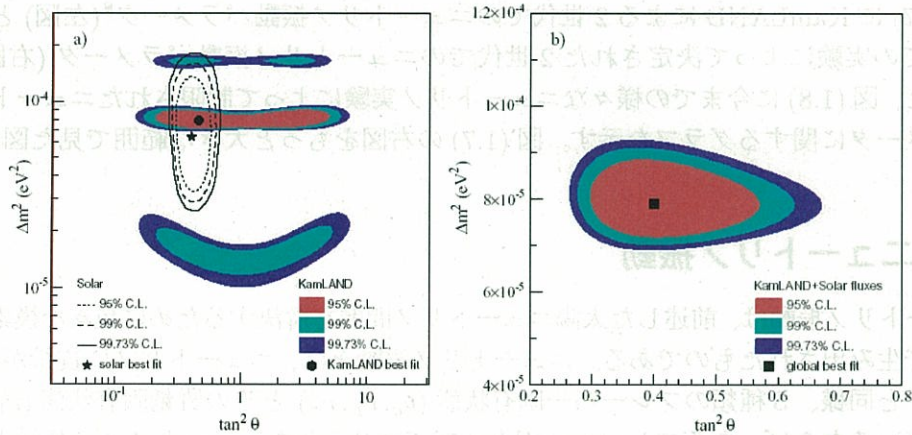


図 1.7: KamLAND による 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (左) と全ての実験によって決定された 2 世代でのニュートリノ振動パラメータ (右)[5]。最適値は、 $\Delta m^2 = 7.9^{+0.6}_{-0.5} \text{ eV}^2, \tan^2 \theta = 0.40^{+0.10}_{-0.07}$ 。

1.4.1 真空中でのニュートリノ振動

行列 U_{MNS} はレプトン混合行列 (または MNS 行列⁹ と呼ぶ) と呼ばれ、生成されるニュートリノ ($|\nu_\alpha\rangle$) とニュートリノの質量固有状態 ($|\nu_i\rangle$) を式 (1.11) のように関係づける。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}^* |\nu_i\rangle \quad (1.11)$$

⁹Maki-Nakagawa-Sakata 行列。クォークにおける混合行列は CKM(Cabibo-Kobayashi-Masukawa) 行列。

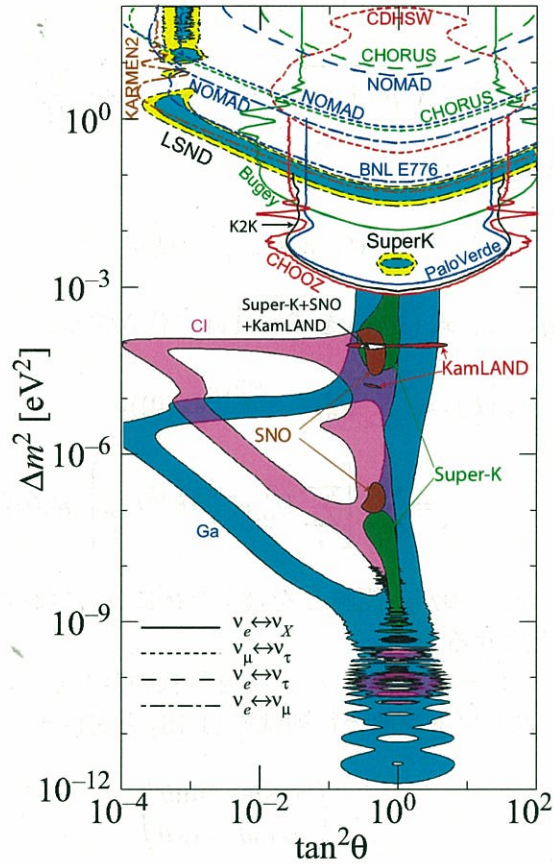


図 1.8: 様々なニュートリノ実験によって制限されたニュートリノ振動パラメータ [23]。

混合行列 U_{MNS} は、混合角 θ と CP 位相角 δ を用いて式 (1.12) のように表される。

$$U_{\alpha i} = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

ここで $s_{ij} = \sin\theta_{ij}$, $c_{ij} = \cos\theta_{ij}$ ($i, j = 1, 2, 3$) を表す。静止系での ν_i の状態 $|\nu_i\rangle$ の時間発展は、シュレディンガー方程式から τ_i を ν_i の静止系での時間、 m_i を ν_i の質量とすると、

$$|\nu_i(\tau_i)\rangle = |\nu_i(0)\rangle e^{-im_i\tau_i} \quad (1.13)$$

と書ける。実験室系での時間 t 、および距離 L を用いて式 (1.13) の右辺の exponential を書き換えると、

$$e^{-im_i\tau_i} = e^{-i(E_i t - p_i L)} = e^{-i(E_i - p_i)L} \quad (1.14)$$

となる。ここで、 E_i 、 p_i はそれぞれ実験室系での ν_i のエネルギー、運動量であり、最右辺はニュートリノの速度を光速 c ($=1$) と近似し、 $t = L/c$ を用いた。ニュートリノの運動

量 p が十分に大きく、 $m_i \ll p$ であるとすれば、

$$E_i = \sqrt{p^2 + m_i^2} \simeq p + \frac{m_i^2}{2p} \simeq p + \frac{m_i^2}{2E} \quad (1.15)$$

と近似することができ式 (1.14) は、

$$e^{-i(E_i - p_i)L} = e^{-i(\frac{m_i^2}{2E})L} \quad (1.16)$$

となる。式 (1.14) を用いて、式 (1.13) を式 (1.11) に代入すると、距離 L での時間発展は、

$$\begin{aligned} |\nu_\alpha(L)\rangle &= \sum_i U_{\alpha i}^* e^{-i(\frac{m_i^2}{2E})L} |\nu_i(0)\rangle \\ &= \sum_\beta \left[\sum_i U_{\alpha i}^* e^{-i(\frac{m_i^2}{2E})L} U_{\beta i} \right] |\nu_\beta(0)\rangle \end{aligned} \quad (1.17)$$

となる。はじめ ν_α だったものが、距離 L を飛んだ後に ν_β になっている確率 $P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta)$ は、 $|\langle \nu_\beta(0) | \nu_\alpha(L) \rangle|^2$ と表せる。

ここで簡単のため、フレーバーを ν_e と ν_τ の2世代のみとしてニュートリノ振動を考えると、式 (1.12) のようなレプトン混合行列は式 (1.18) と書ける。

$$U = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \quad (1.18)$$

$\Delta m^2 \equiv m_2^2 - m_1^2$ として、式 (1.18) を用いて電子ニュートリノの存在確率をもとめると、

$$\begin{aligned} P(\nu_e \rightarrow \nu_e) &= |\langle \nu_e(0) | \nu_e(L) \rangle|^2 \\ &= 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m^2 [\text{eV}^2]}{E [\text{MeV}]} L [m] \right) \end{aligned} \quad (1.19)$$

となる。 $(\hbar c \approx 197 [\text{MeV}\cdot\text{fm}])$ を用いた。) この式からわかるように、ニュートリノ振動はエネルギーと飛距離、そして振動後のニュートリノとの質量差と混合角に依存する。

1.4.2 物質中でのニュートリノ振動

ここでは、物質中をニュートリノが通過した場合のニュートリノ振動について考えていく。ニュートリノが物質中を通過すると、陽子、中性子、電子などの物質から弱い相互作用を受ける。このため物質中を通過するニュートリノには有効質量が加わることになる。全てのニュートリノ (ν_e, ν_μ, ν_τ) は物質中の陽子、中性子、電子と中性カレントで相互作用する。しかし、電子型ニュートリノだけは、電子と荷電カレント¹⁰ で相互作用する。従って、 ν_e だけが ν_μ, ν_τ とは違ったポテンシャルを受ける。このため、物質中でのニュートリノ振動は真空中でのニュートリノ振動と異なったものとなる。こうしたニュートリノの伝播への物質の影響を、MSW 効果¹¹ という。

¹⁰ 中性カレントと荷電カレントは 2.2.2 節で詳細に述べる。

¹¹ Mikheyev-Smirnov-Wolfenstein effect

ν_e が物質から受ける有効ポテンシャル V_{ν_e} は、 ν_μ, ν_τ が物質から受ける有効ポテンシャル $V_{\nu_\mu}, V_{\nu_\tau}$ を基準にとると、

$$\begin{aligned} V_{\nu_e} &= \sqrt{2}G_F N_e \\ V_{\nu_\mu, \nu_\tau} &= 0 \end{aligned} \quad (1.20)$$

となる。ただし、 G_F はフェルミ結合定数で、 N_e は電子数密度である。以下、電子数密度が一定で、 ν_e と ν_μ の 2 フレーバーの場合について考える。

レプトン混合行列 U_{MNS} は式 (1.18) で与えられ、物質がある場合はこれにポテンシャル (V_{ν_e}, V_{ν_μ}) を加えてニュートリノの時間発展方程式を考える必要がある。ポテンシャルを加えた場合のニュートリノの時間発展方程式の質量行列を対角化する行列を U_m とすると、 U_m は物質中での MNS 行列と解釈することができる。物質中での混合角 θ_m を用いて、

$$U_m = \begin{pmatrix} \cos\theta_m & \sin\theta_m \\ -\sin\theta_m & \cos\theta_m \end{pmatrix} \quad (1.21)$$

と書ける。ここで、 θ_m は物質中での混合角で、

$$\tan 2\theta_m = \frac{\sin 2\theta}{\cos 2\theta - \frac{L_{osc}}{L_0}} \quad (1.22)$$

と表され、 L_{osc} は真空中でのニュートリノ振動長、 L_0 は荷電カレントのニュートリノ相互作用長であり、それぞれ

$$\begin{aligned} L_{osc} &= \frac{4\pi E}{\Delta m^2} \\ L_0 &= \frac{2\pi}{V_{\nu_e}} = \frac{\sqrt{2}\pi}{G_F N_e} \end{aligned} \quad (1.23)$$

である。

これにより、物質中での混合角は式 (1.24) の時、最も共鳴が大きくなり遷移確率は $\sin^2\theta_m = 1$ となる。

$$\begin{aligned} \cos 2\theta &= \frac{L_{osc}}{L_0} \\ \Leftrightarrow \sqrt{2}G_F N_e &= \frac{\Delta m^2}{2E} \cos 2\theta_0 \end{aligned} \quad (1.24)$$

式 (1.24) は MSW 共鳴条件と呼ばれ、ニュートリノ振動が大きくなる。またこの時の電子数密度を臨界密度といい、電子数密度がこの条件を満たせば真空中の混合角 θ_0 とは関係なく $\theta_m = 45^\circ$ となる。これはニュートリノのフレーバー遷移確率が、真空中では小さくても物質中では十分に大きくなることを示している。

式 (1.24) を書き換えると、

$$\begin{aligned} \Delta m^2 \cos 2\theta &= 2\sqrt{2}G_F E N_e \\ &\simeq 0.7 \cdot 10^{-7} \frac{E}{\text{MeV}} \cdot \frac{\rho_e}{\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}} eV^2 \end{aligned} \quad (1.25)$$

となる。これに太陽密度 $\rho_e \simeq 10^2 \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 、太陽中心部で生成されるニュートリノのエネルギー $E \simeq 1 \text{MeV}$ を代入すると、共鳴条件は $\Delta m^2 \simeq 10^{-5} \text{eV}^2$ となる。

また、長さ L だけ物質を伝播した後、 ν_e が ν_μ に変化する確率は、

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) = \sin^2 \theta_m \sin^2 \left(\frac{\pi L}{L_m} \right) \quad (1.26)$$

と表される。 L_m は物質中での振動長で、 $L_m = L_{osc} \frac{\sin 2\theta_m}{\sin 2\theta}$ であり、電子数密度 N_e が 0 である極限では真空中の値に近づくことがわかる。以上、電子数密度が一定の場合の計算であるが、物質中での振動長 L_m より十分長い距離で電子数密度が変化したときには有効である。

1.5 低エネルギー太陽ニュートリノ観測の意義

1.5.1 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測の意義

KamLAND の液体シンチレータを純化することによって多くのバックグラウンドが除かれ、より低エネルギー領域のニュートリノを観測できるようになると考えられている。その他にも地球ニュートリノ検出効率の改善も期待され、地球内部エネルギー量の解明へ一歩近づくことになり、ニュートリノ地球物理学の進歩につながる。ここでは、液体シンチレータ純化の最大のターゲットである ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノの観測についてその意義を論ずる。

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が、先に述べたように原子核の反応レートや、太陽表面での化学物質の組成比などの情報が必要である。特に、原子核反応レートに大きな影響を与える S 因子は、太陽内部の温度が実験的に求められるエネルギー領域より低すぎるために、高エネルギーで行われた実験結果より理論的な補正を加え外挿することによってもとめられており、これが最終的にニュートリノフラックスに大きな不定性を与えている。

${}^8\text{B}$ ニュートリノは太陽全体からくるニュートリノフラックスのうち図 (1.2) からわかるように、0.018% しかなく、 $\pm 23\%$ (1σ) と不確定性が大きい。一方で ${}^7\text{Be}$ ニュートリノは図 (1.2) よりわかるように、太陽全体のニュートリノフラックスのうち 7.4% を占めており、標準太陽モデルによる誤差は $\pm 12\%$ であるので、 ${}^8\text{B}$ ニュートリノに比べると小さく、パラメータによる誤差 2% に比べて大きいので、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測すればフラックスの誤差を小さくできると期待される。今まで様々な太陽ニュートリノ実験が行われてきたが、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノをエネルギースペクトルを分離して測定した実験はなく、実験的な誤差は 40% (1σ) と非常に大きい。 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを他のニュートリノと分離して観測することができれば、電子散乱実験の測定精度は 10% 以内と期待されるので、4 倍程度の誤差の改善が見込まれる。また ${}^7\text{Be}$ ニュートリノの観測は、pp ニュートリノフラックスの実験的な不定性を 2.5 倍改善できる。もし $\pm 3\%$ の精度で ${}^7\text{Be}$ ニュートリノの観測ができた

ら、先ほどあげた ${}^7\text{Be}$ ニュートリノと pp ニュートリノの実験的な不定性にたいして、さらにもう 2 倍の改善が期待できる。

また KamLAND は今までに ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測している塩素実験やガリウム実験とは異なり、実時間計測であるのでニュートリノのエネルギーと時間情報を得ることができる。

このように ${}^7\text{Be}$ ニュートリノ観測は太陽内部構造の検証、ひいては恒星の内部構造と進化の理論の検証となる。

Neutrino	Neutrino fluxes	theoretical uncertainties
	from the sun [%]	(1σ)
pp	90.707	$\pm 1\%$
${}^7\text{Be}$	7.421	$\pm 12\%$
pep	0.214	$\pm 2\%$
${}^8\text{B}$	0.00884	$\pm 23\%$
hep	$\sim 10^{-5}$	$\pm 16\%$
${}^{13}\text{N}$	0.872	+37% -35%
${}^{15}\text{O}$	0.768	+43% -39%
${}^{17}\text{F}$	0.00902	$\pm 44\%$

表 1.2: 太陽ニュートリノフラックス全体 (BP04) への寄与と不定性 [3]

Neutrino	Neutrino fluxes [$\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$]	
	BP04(Yale)	BS05(OP)
pp	5.94×10^{10}	5.99×10^{10}
${}^7\text{Be}$	4.86×10^9	4.84×10^9
pep	1.40×10^8	1.42×10^8
${}^8\text{B}$	5.79×10^6	5.69×10^6
hep	7.88×10^3	7.93×10^3
${}^{13}\text{N}$	5.71×10^8	3.07×10^8
${}^{15}\text{O}$	5.03×10^8	2.33×10^8
${}^{17}\text{F}$	5.91×10^6	5.84×10^6

表 1.3: BP04 と BS05 におけるニュートリノフラックスの比較 [3]

振動パラメータへの影響

現在のところ、 Δm^2 に関しては距離が $\sim 180\text{km}$ とニュートリノ振動を観測するのに適している KamLAND の原子炉反ニュートリノの結果がもっとも制限しており、また $\sin^2\theta$ に関しては、NC、CC 反応を用いて全世代のニュートリノを観測している SNO と、電子

散乱をもちいて電子ニュートリノを観測している Super-Kamiokande の結果がもっとも制限をしている。(SNO も SK も ^8B ニュートリノを観測している。)

KamLAND において ^7Be ニュートリノを観測することで、ニュートリノフラックスからニュートリノ振動パラメータである混合角 θ_{12} が決定できる。しかし、太陽ニュートリノのフラックスの大部分を占める pp ニュートリノは理論的な不定性が $\pm 1\%$ なので、もし pp ニュートリノを観測することができれば大幅に θ_{12} を制限することができるが、不定性が $\pm 12\%$ ある ^7Be では θ_{12} をそれほど制限することは期待できない。

また別の見方をすると、KamLAND 実験が原子炉反電子ニュートリノで示した LMA 解 (大混合角解) を、太陽からの電子ニュートリノで直接検証できるという効果もある。ニュートリノ振動の距離依存性を示す季節変動¹²、またニュートリノ振動の MSW 効果による昼夜のフラックスの違い¹³ などを確認することができる。

1.5.2 CNO サイクルと pep 太陽ニュートリノ検出の可能性

現在までに図 (1.4) に示されているような CNO サイクルのニュートリノは観測されていない。しかし、液体シンチレータの純化によってバックグラウンドが大きく減った場合、KamLAND において CNO サイクルのニュートリノと pep 太陽ニュートリノを観測できる可能性がある。CNO サイクルのニュートリノがあると予測される領域には、原子核破砕反応によるバックグラウンドがあり、これは液体シンチレータの純化により取り除くことはできないが、解析的に取り除ける可能性があり現在研究中である。

もし、CNO サイクルのニュートリノが観測できた場合、検出自体が初ということや、KamLAND 単独で pp チェインの ^7Be ニュートリノと CNO サイクルのニュートリノと星の内部で起こる核反応の両方ともを観測できることになり、太陽内部の 2 つの核反応の比率を実験的に確認することができる。

また pep ニュートリノは pp ニュートリノと並んで、pp-連鎖の一番最初に起こる反応でありかつ理論的な不定性が $\pm 2\%$ と少ない。そのため、CNO サイクルのニュートリノと pep ニュートリノは大体同じエネルギー領域にみられるが、理論的な不定性の大きい CNO ニュートリノの数を pep ニュートリノの数に不定性が小さいことより、見積もることができる。この CNO サイクルのニュートリノは表 (1.3) に示すように標準太陽模型の BP2004 と BS2005¹⁴ では核反応率に用いられる S 因子の値が半分になったため、CNO サイクルのニュートリノフラックスの予測値も半分になった。このように、CNO サイクルのニュートリノフラックスはまだまだ理論的な不定性が大きいので、それを KamLAND で検出できれば実験的な値を確認することができ意義が大きいといえる。

¹²地球と太陽間距離の 7%変動による効果。すでにほぼ排除はされているが VO 解の検証ができる。

¹³地球内部での MSW 効果の振動 (非断熱的振動) を示す Low 解の検証ができる。これもほぼ排除されている。

¹⁴BP2004 は 2004 年度に BS2005 は 2005 年度に John N. Bahcall らによって示された結果

第2章 KamLAND 実験

KamLAND(Kamioka Liquid Scintillator Anti-Neutrino Detector) 実験は、低エネルギー領域(数百 keV から数 MeV) のニュートリノを検出することを目的としている。その主な研究目的を以下に示す。

- (a) 原子炉反ニュートリノ振動の検出によるニュートリノ振動パラメータの精密測定
- (b) 地球内部反ニュートリノの検出による地球内部エネルギー量の解明
- (c) ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ検出による標準太陽モデルの検証

である。平成 18 年 1 月 23 日現在では、(a)、(b) に関する論文が発表されている。(c) に関しては本論文の示すように、現在研究が進められているところである。

この章では、KamLAND 検出器の構造やそこで用いられている主な機器、またニュートリノの検出原理などを述べる。

2.1 KamLAND 検出器

KamLAND 検出器は岐阜県飛騨市神岡町にある池ノ山の、山頂から約 1000m 地下に建設されている。この場所は以前 Kamiokande 検出器が設置してあった場所で、1997 年に Kamiokande¹ 撤去後実験室空洞をさらに 4m 掘り下げて KamLAND が建設された。KamLAND は 2002 年からデータ収集が開始されている。こうした地下に建設する理由は山の岩がシールドの役割をし、宇宙線ミュオンによるバックグラウンドを地上の約 10 万分の 1 に減少させることができるからである。その検出頻度は 0.34Hz 程度である。

図 (2.1) に KamLAND エリアの全体図を示す。

KamLAND エリアは、池ノ山の坑道入り口より 3km 内部に位置していてエリア近くには Super-Kamiokande や Xmass² といった他のグループも実験をおこなっている。図 (2.1) が示す water purification area では、KamLAND 検出器の外部検出器内に満たされる純水が製造される。また control room では、データ収集を監視している。その他のエリアについては後の節で述べる。

¹大マゼラン星雲で起きた超新星爆発に伴うニュートリノを世界で初めて観測に成功した検出器。小柴昌俊 東京大学名誉教授がこの功績より 2002 年にノーベル物理学賞を受賞した。

²低エネルギー太陽ニュートリノ (${}^7\text{Be}$, pp ニュートリノ)、2 重ベータ崩壊、宇宙の暗黒物質の観測を目指す液体キセノン検出器

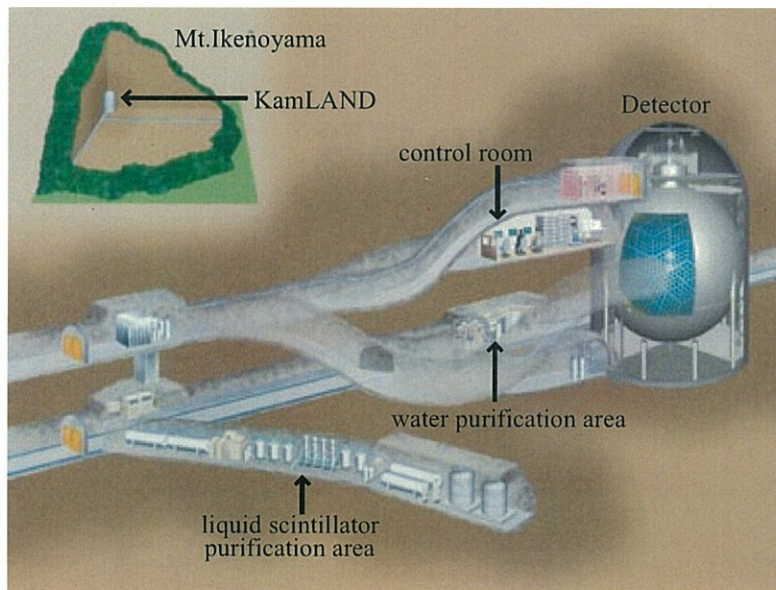


図 2.1: KamLAND エリアの全体図

2.1.1 構造

図 (2.2) に KamLAND 検出器の構造を示す。検出器の中心には、直径 13m の透明な球形バルーン³ が位置していてその中に 1000 トンの液体シンチレータ⁴ がはいっている。そして、バルーンの外側は直径 18m のステンレスタンクが覆っていて、バルーンとステンレスタンクの間はミネラルオイル⁵ で満たされている。

ステンレスタンクの内壁には光電子増倍管 (17 インチが 1325 本、20 インチが 554 本) が取り付けられていて、飛来してくるニュートリノが液体シンチレータ内で反応を起こして発生したシンチレーション光をその光電子増倍管で検出するしくみとなっている。

また、ステンレスタンクの外側の円筒上の外壁には 20 インチの光電子増倍管 225 本が取り付けられていて、ステンレスタンク外側と円筒の間の部分 (図 (2.2) では Outer Detector) は、純水で満たされている。これは、宇宙線ミュオンを識別することと、地下の岩盤中の放射性元素から放出されるガンマ線や中性子などのバックグラウンドを防ぐためである。

検出器上部にはキャリブレーション (較正) を行うための装置があり、ここから KamLAND 検出器内部に ^{60}Co などの放射線源を入れキャリブレーションをおこなっている。KamLAND では各光電子増倍管についてゲイン (増倍率)、タイミングの調整、そしてエネルギーの較正が行われている。

³厚さ 135 μm のナイロン/エチレン-ビニルアルコール (EVOH) でできている。酸素等の気体遮断性が非常に高い。

⁴構成はドデカン 80%、プソイドクメン 20%、PPO1.5g/l。詳しくは 4.1.2 節参照

⁵ドデカン ($\text{C}_{12}\text{H}_{26}$) + イソパラフィン ($\text{C}_n\text{H}_{2n+2, n \sim 15}$)

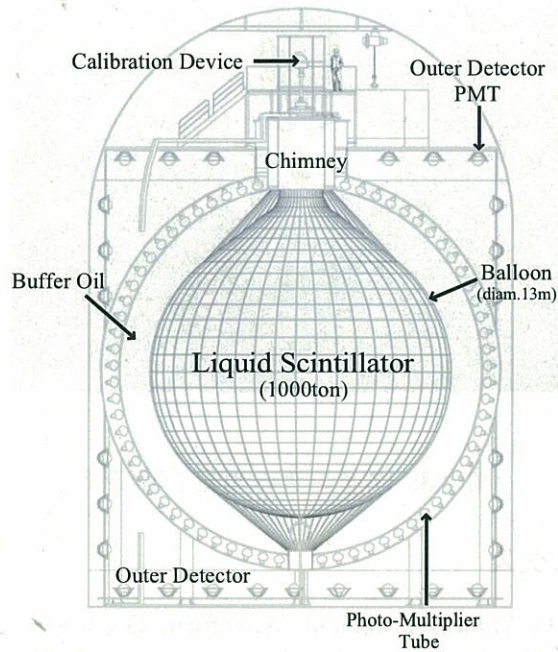


図 2.2: KamLAND 検出器の内部構造

2.1.2 光電子増倍管

KamLAND 実験では、Kamiokande で使用された 20 インチ光電子増倍管 (Photo-Multiplier Tube) と、KamLAND 実験のために新しく改良された 17 インチ光電子増倍管が使用されている。内部検出器のステンレスタンクの内側に 17 インチの光電子増倍管が 1325 本、20 インチが 554 本、また外部検出器には 20 インチの光電子増倍管が 225 本取り付けられている。図 (2.3) は現在 KamLAND で使われている光電子増倍管である。この 17 インチ光電子増倍管は Super-Kamiokande で使用されている 20 インチ光電子増倍管を改良したもので、時間分解能を向上させるために、時間特性の悪い 17 インチ光電子増倍管の周縁部をマスキングし、ダイノードの形状をベネチアン・ブラインド型からライン・フォーカス型に変更し、さらにブリーダー回路を等分割ブリーダー回路からテーパーブリーダー回路に変更している。その結果、17 インチ光電子増倍管は 20 インチのものと比べて時間分解能が 3nsec から 1.5nsec に向上している。これは方向性をもたないシンチレーション光において、イベントの位置の決定精度、エネルギー分解能、パルス波形による粒子識別能力を向上させるために必要である。

検出器の中心部で 1MeV のニュートリノ反応が起きると、約 300p.e(photo electron) の光電子信号が期待される。シンチレーション光は等方的に発生するため、光電子増倍管 1 本につき、光電子は 1p.e 程度でしかない。したがって、光電子増倍管には 1 光電子相当の光を識別出来ることが必要である。



図 2.3: 17 インチの光電子増倍管

2.1.3 エレクトロニクス

KamLAND は ATWD (Analog Transient Waveform Digitizer) と呼ばれる光電子増倍管 (PMT) からの波形を記録するエレクトロニクスを使用している。discriminator により $1/3\text{p.e.}$ が閾値として設定されており、これを超えた PMT のシグナルはヒット情報を生成し、後述するトリガーがかかる時波形が記録される。PMT からの波形は、約 200nsec のデータを 1.5nsec ずつずれた 128 のチャンネルによって分けられ、波高に応じて 20 倍、2 倍 (20 倍の場合にピークが飽和した時)、0.5 倍 (2 倍の場合にピークが飽和した時) に増幅され、それぞれのチャンネル毎の電荷をトリガー信号によりデジタル化して出力する。また、各々の PMT には 2 つの ATWD チャンネル (A-channel、B-channel) が使われていて、イベントごとに A と B をスイッチすることで dead time (不感時間) によるデータ収集時間の損失を減少させている。図 (2.4) はエレクトロニクスの模式図である。

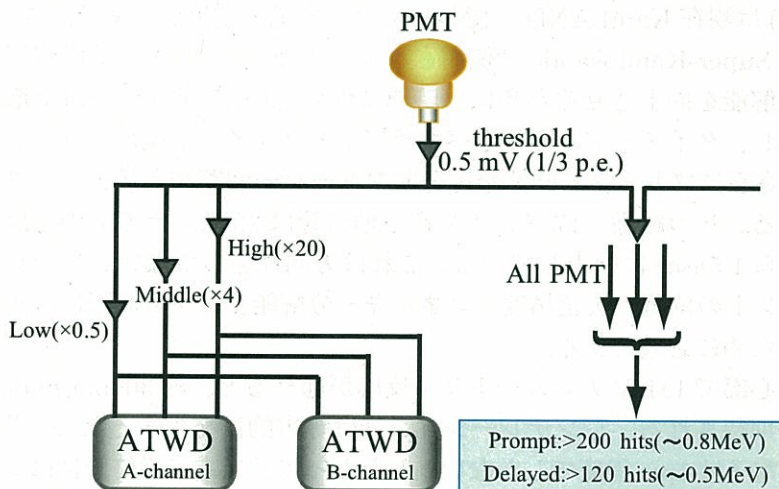


図 2.4: KamLAND 検出器のエレクトロニクス

2.1.4 トリガー回路

KamLAND 実験において、内部検出器で検出されるイベントに対して2種類のトリガーをかけている。これは、後述する遅延同時計測法によって低エネルギーイベントを検出するためである。図(2.4)で示しているように、全てのイベントに対して17インチPMTの総ヒット数(Nsum)が180ヒット(~0.64 MeV)を越えると、最初のトリガーである先発(prompt)トリガー(global trigger)がかかる。続いてその先発トリガーの後1msecの間に120ヒットの閾値で後発(delayed)トリガーがかかる。

トリガーの検出効率を見積もるために、この後発トリガーを用いる。先発トリガーの検出効率を式(2.1)の様に PMT hits ≥ 180 hits の先発イベントの数と後発イベントの数の比で定義する。以下の図はエネルギーに関するトリガーの検出効率である。約1MeV以上のイベントに対しては検出効率が100%になる。

$$\epsilon_{trigger} = \frac{\text{number of NsumMax} \geq 180 \text{ events}}{\text{number of delayed events}} \quad (2.1)$$

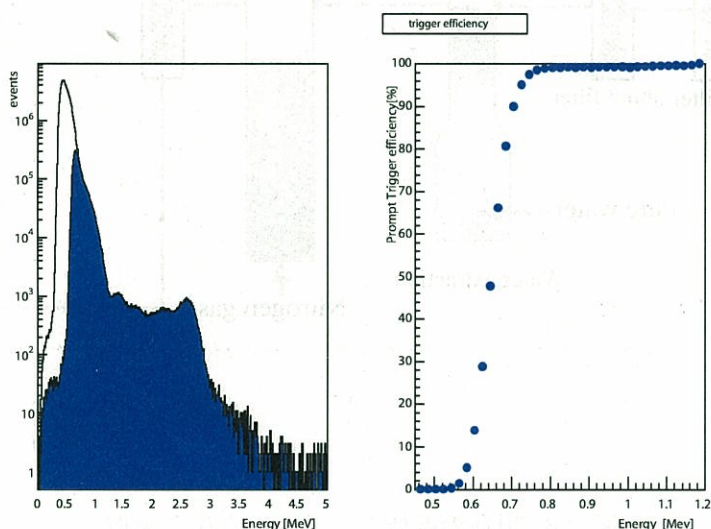


図 2.5: 左図の白線は後発トリガーのイベント。青色の部分 $N_{sum} \geq 180$ の部分。右図は左図より求めた先発トリガーの検出効率である [11]。

外部検出器によるトリガーもかけられていて、トリガーの閾値は、天頂部が6hits、側面上部が5hits、側面下部が6hits、底部が7hitsとなっている。これらの外部検出器のトリガー検出率は現在99%である。

また、"history"トリガーと呼ばれるトリガーがあり、トリガーが低閾値を越えるPMT hitsの間、最長200 nsec まで25 nsec 毎にPMTのヒット総数を取り続ける。この最長200 nsecの間で最大のものを"NsumMax"と言う。

他に、"prescale"トリガーと呼ばれるトリガーがあり、各秒毎に一定時間かかる。このトリガーは⁶⁰Co等の線源を用いたデータや、数百keV以下の低エネルギーイベントの解析等、イベントレートが高く通常のトリガーモードではデータ収集が出来ないイベントの

研究をするために用いられる。

2.1.5 現在の純化装置

KamLAND のバルーン内に満たしている液体シンチレータ、またステンレスタンク内のバルーン外側に満たされているバッファオイルは、ニュートリノ観測においてバックグラウンドとなる不純物を含んでいる。その量は微量ではあるが、低エネルギーイベントの観測においてはその量は無視できない。そのため、それらを除去するための装置が必要となる。図(2.6)に、現在の KamLAND エリア内にある液体シンチレータとバッファオイルの純化装置を示す。

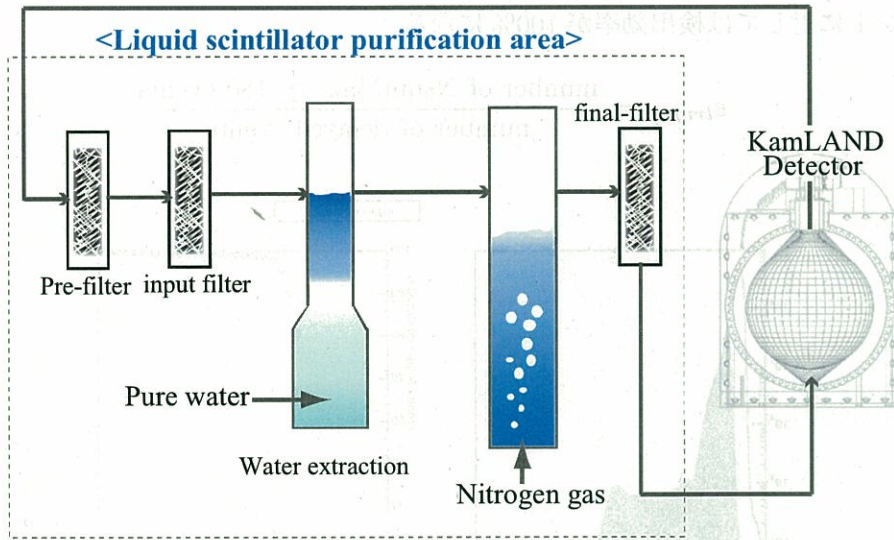


図 2.6: 現在の液体シンチレータ純化装置

純化装置は2つの系に分割されていて、液体シンチレータとバッファオイルそれぞれのものがある。それぞれの系は検出器に直接接続されていて循環できるようになっている。系は、3つのフィルターと液液抽出塔、窒素パージ塔で構成されている。

それぞれの純化装置について説明する。まずフィルターに関しては、液体シンチレータに含まれるほこりを取り除くために設置されている。続いて液液抽出塔は、液体シンチレータと KamLAND の純水エリアで製造された純水を混合攪拌し、液体シンチレータから不純物を取り除くためのものである。液液抽出法とは、互いに混じり合わない2液を混ぜあわせ、一方の液に含まれる溶解物を分配係数の違いを利用して、他方に移す方法である。この方法のポイントは、2種類の液体が互いに混じり合わずに密度差があり容易に2層に分かれること、また取り除きたい物質が元の溶液よりも、もう一方の溶液(混合する液)に溶けやすいことである。

KamLAND では純水と液体シンチレータを混合するが、純水を用いる理由は極性を持

つ水分子の電氣的引力により、無極性分子からなる液体シンチレータ中に含まれるウラン、トリウム、カリウムのような金属元素イオンが水分子に吸着されることを利用するためである。KamLAND 実験での液液抽出は純水と液体シンチレータを互いの重力で向流させる単純なものであり、特別な化学操作無しに常温、常圧で行える長所がある。

窒素パージ塔は、液体シンチレータに窒素を送り込む装置である。3つの効果があり、1つめは、液液抽出過程で混入する微量の水分をとばすことであり、2つめは、液体シンチレータに溶け込んでいる酸素ガスを追い出すことである。酸素を追い出す理由は、液体シンチレータの発光量を減少させる酸素クエンチング⁶を防ぐためである。3つめは窒素を液体シンチレータに溶かしこむことによって放射性希ガス元素である ^{222}Rn 、 ^{85}Kr 、 ^{39}Ar を追い出すことである。純化装置は以上のような構成となっている。

初期の純化の際は、現在のように KamLAND エリアに外気を取り入れラドン濃度をさげていなかったことや、配管の接続部のリークによる液体シンチレータへの ^{222}Rn 、 ^{85}Kr 混入など、主にラドンに対して注意深いケアがなされていなかったこともあり、原子炉反ニュートリノの検出に関して問題にならなかった低エネルギー領域のバックグラウンドを生み出す不純物が、除去しきれなかった可能性が高い。そのため、現在 KamLAND では新たな純化装置を建設する計画をたてている。新たな純化装置については次節で述べる。

2.1.6 solar phase における純化装置

現在、KamLAND ではより低エネルギー領域の太陽ニュートリノを観測するための純化装置の開発研究が進められている。 ^7Be ニュートリノを観測する上で大きなバックグラウンドになっているのが、 ^{210}Bi からの β 線と ^{85}Kr からの β 線である。 ^{210}Bi の元となるのが、半減期 22.3 年の ^{210}Pb でありこれを液体シンチレータ中から除去しなければならぬ。これらのバックグラウンドの詳細については、3章で述べる。

液体シンチレータの純化の方法として、KamLAND では蒸留精製法を用いることによって液体シンチレータを純化することを決定している。本論文では、その蒸留法による不純物の除去 (^{222}Rn 、 ^{85}Kr 、 ^{210}Pb 、 ^{40}K) を主題している。蒸留法については4、5、6章で述べる。

実際に次年度 KamLAND エリアに大規模な新たな純化装置を建設することが決定している。図 (2.7) に今年度 (2006 年度) 建設予定の純化装置について示す。

図 (2.7) の説明をすると、まず KamLAND 検出器内部のバルーンより直接接続されたパイプを通じて液体シンチレータをバッファータンクに抜き出す。抜き出された液体シンチレータは、蒸留塔に順次送られ、まず液体シンチレータの成分の中で沸点のもっとも低いプソイドクメンのみが、1塔めで分留される。続いて、プソイドクメンの蒸留が終わると2塔めに残液 (ドデカン+PPO) が送られ2塔めで、次に沸点の高いドデカンが蒸留される。そして、最後に2塔めの残液を3塔めに送りもっとも沸点の高いPPOを蒸留する。それぞれ蒸留された液体シンチレータの成分は混合タンク (Mixture tank) に送られ、ここで元の液体シンチレータの構成比⁷になるように混ぜ合わせられる。

蒸留され不純物が取り除かれた液体シンチレータを窒素パージ塔に送り、窒素で液体シ

⁶酸素分子は強い電子受容性を持つので、励起一重項状態の溶媒分子とエキシプレックス (基底状態と励起状態の分子の会合によってできた2量子体) を形成、解離し、その過程においてエネルギーが失われる。

⁷ドデカン:80%、プソイドクメン:20%、PPO:1.5g/l

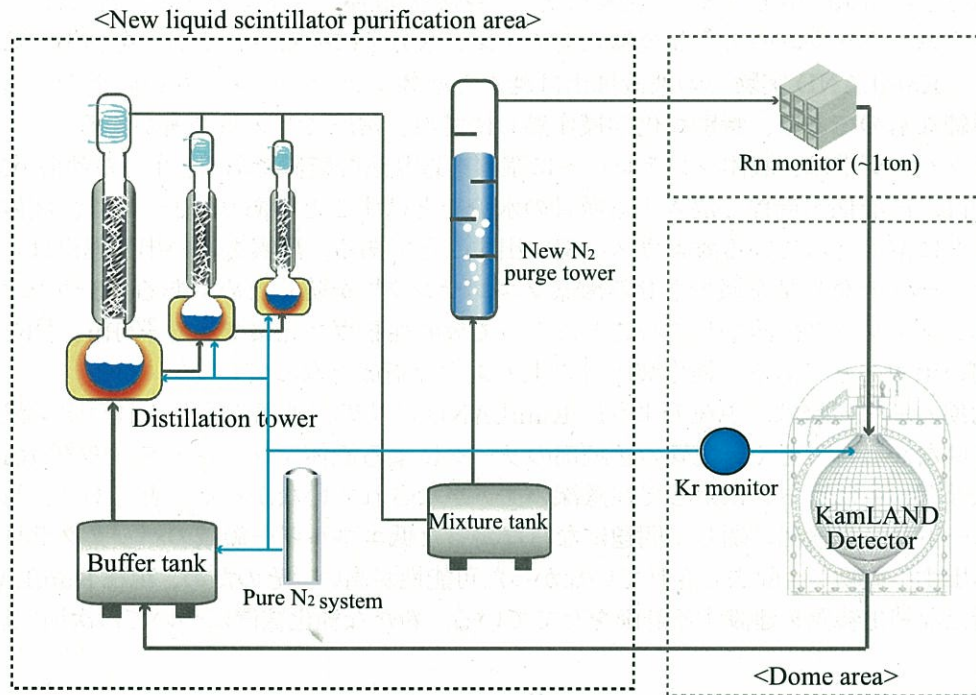


図 2.7: 次年度建設予定の液体シンチレータ純化装置全体図

ンチレータを置換する。窒素パージ塔の役割は前の節で述べたように3つあり、放射性希ガス元素 (^{222}Rn 、 ^{85}Kr) の除去と酸素クエンチングを防ぐために溶存酸素を追い出すこと、水分をとばすこと (液液抽出は行わないので水分はもともと少ない) である。

窒素パージ塔の後、液体シンチレータはラドン検出器を通されラドン濃度をチェックしてから KamLAND 検出器内部のバルーンに戻される。ラドン濃度は $1\text{mBq}/\text{m}^3$ 以下であることが要求されており、これをチェックするラドン検出器⁸ は現在開発中である。

ラドン検出器 (miniLAND) の特徴として、セグメントに分かれていることがある。キャリブレーションを容易にする狙いがあり、図 (2.8) に miniLAND の開発中である1セグメントの図を示す。

1セグメントの大きさは縦が1mで横と高さが20cm程度であり、アクリルでできたケースの中に液体シンチレータが入れられており、図 (2.8) のように周りに5インチの光電子増倍管が2本取り付けられている。miniLAND は30セグメントぐらいで構成される予定である。

バッファータンクや蒸留塔、バルーン内の気層部など液体シンチレータが触れたり、通る経路には純化した窒素を送る。溶存酸素濃度が高い状態で液体シンチレータに高熱を加えると、液体シンチレータが酸化して性質を変化させてしまう恐れがあるからである。また窒素自体がクリプトンを含んでいる可能性があるため、バルーン内の気層部に封入する前にクリプトンモニターに窒素を通し、溶存クリプトン濃度をチェックしてから窒素を通す予定である。

⁸miniLAND と呼んでいる。

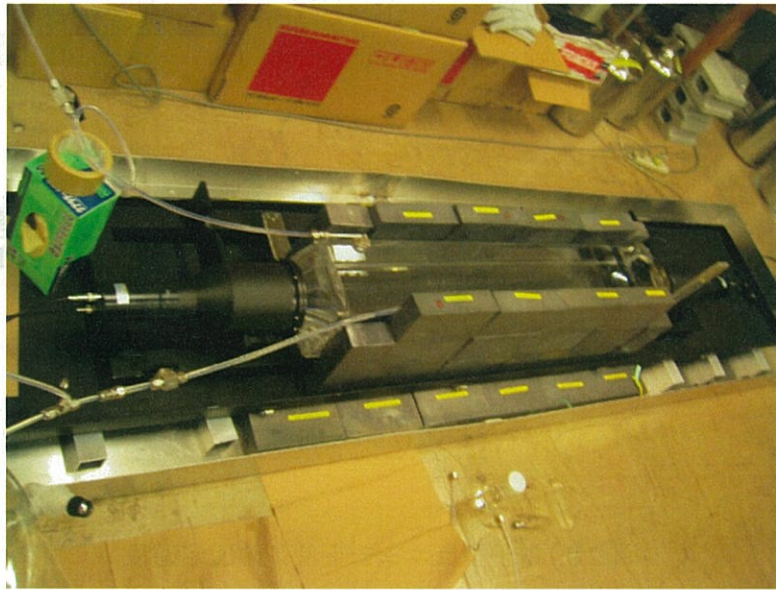


図 2.8: miniLAND の 1 セグメント

2.2 ニュートリノ検出原理

2.2.1 反ニュートリノ検出原理

KamLAND 実験では、すでに記したように原子炉からくる電子型反ニュートリノを捕らえている。その検出するために用いられている反応は以下のような逆 β 崩壊である。



反応の閾値は、式 (2.2) のようになる。

$$\begin{aligned} E_{th} &= (m_n + m_e) - m_p \\ &= 1.805(\text{MeV}) \end{aligned} \quad (2.3)$$

最初に電子型反ニュートリノが液体シンチレータ中の陽子と反応し、陽電子と中性子を生成する。KamLAND では反応後の粒子をそれぞれ別々の信号として検出される。反応過程について図 (2.9) に示す。

反応後の陽電子はその後液体シンチレータ中の電子と対消滅を起こし、0.511MeV の γ 線を 2 本放出する。この γ 線の他にも、陽電子が液体シンチレータ中を運動する際に放出するエネルギーもあり、この両方のエネルギーが KamLAND では実際に観測されている。中性子は陽電子に比べると質量が十分に大きいため、ニュートリノと陽子の衝突の際に変換されるエネルギーの大半は陽電子が得る。逆 β 崩壊反応はエネルギー保存則より、

$$\begin{aligned} E_{\bar{\nu}_e} + M_p &= (T_{e^+} + m_e) + (M_n + T_n) \\ T_n &\approx 0, \quad (T_x : \text{粒子 } X \text{ の運動エネルギー}) \end{aligned} \quad (2.4)$$

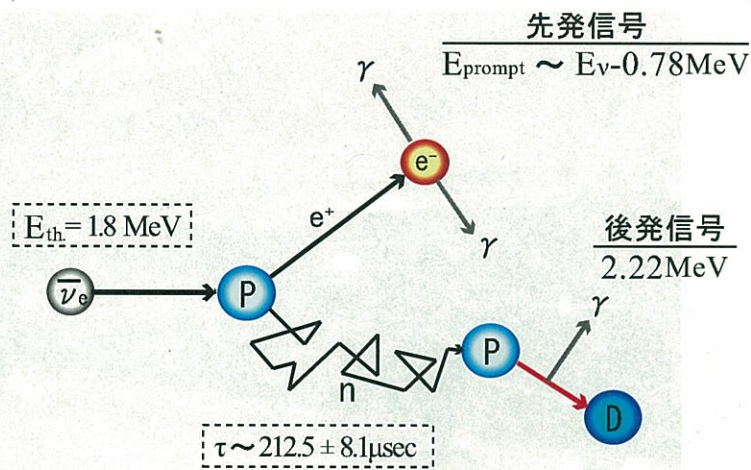


図 2.9: 電子型反ニュートリノの反応過程

と書ける。よって式 (2.4) を用いて、KamLAND で実際に観測される信号のエネルギー $E_{visible}$ をもとめると、

$$\begin{aligned}
 E_{visible} &= T_{e^+} + 2m_e \\
 &= (E_{\bar{\nu}_e} + M_p - M_n - m_e) + 2m_e \\
 &\simeq E_{\bar{\nu}_e} - 0.78(\text{MeV})
 \end{aligned} \tag{2.5}$$

となり、これが先発信号となる。

次に後発信号となる中性子捕獲を見ていく。生成された中性子は ~ 10 keV の反跳エネルギーを持ち、図 (2.1) のように液体シンチレータ中で陽子と弾性散乱を繰り返して約 $210 \mu\text{sec}$ 後に熱中性子となる。熱中性子とは、運動エネルギーが原子核との衝突により低くなり、物質の分子の熱運動と平衡に達した中性子 (~ 0.025 eV) であり、この状態における中性子の速度分布はその温度におけるマクスウェルの式で表される。この熱化中性子が陽子に捕獲され重水素となるが、その際に 2.2 MeV の γ 線が放出され、これが後発信号となる。

このような一つの電子型反ニュートリノに対して二つの信号が得られ、二つの信号の時間間隔や、空間相関、また各々にエネルギーの条件を課すことによってニュートリノ反応を他のバックグラウンドと識別することができる。この計測法は一般に遅延同時計測法と呼ばれ、この方法を用いることで KamLAND では非常に多くのバックグラウンドを除去し、電子型反ニュートリノの検出を行うことができる。

逆 β 崩壊の反応断面積

電子型反ニュートリノに関する $\bar{\nu}_e p \rightarrow n e^+$ の逆 β 崩壊反応における微分反応断面積は、最低次の近似において式 (2.6) のように書ける。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\cos\theta}\right) = \frac{\sigma_0}{2} [(f^2 + 3g^2) + (f^2 - g^2)V_{e^+}\cos\theta] E_{e^+} p_{e^+} \quad (2.6)$$

ここで V_{e^+} 、 E_{e^+} 、 p_{e^+} は陽電子の速度、エネルギー、運動量を示していて、

$$\begin{aligned} V_{e^+} &= \frac{p_{e^+}}{E_{e^+}} \\ E_{e^+} &= E_{\bar{\nu}_e} - (m_n - m_p) \\ p_{e^+} &= \sqrt{E_{e^+}^2 - m_{e^+}^2} \end{aligned} \quad (2.7)$$

である。また f はベクトル結合定数、 g は軸性ベクトル結合定数を表し、 $f=1.0$ 、 $g=1.26$ である。 σ_0 は内部輻射補正 δ_{inner}^{rad} を含む規格化定数で式 (2.8) の様になる。

$$\begin{aligned} \sigma_0 &= \frac{G_F^2 \cos^2 \theta_C}{\pi} (1 + \delta_{inner}^{rad}) \\ \delta_{inner}^{rad} &\simeq 0.024 \\ \theta_C &= 0.974 \end{aligned} \quad (2.8)$$

これらを用いて全反応断面積を計算すると、

$$\begin{aligned} \sigma_{total} &= \sigma_0 (f^2 + 3g^2) E_{e^+} p_{e^+} \\ &= 9.52 \times 10^{-44} \left(\frac{E_{e^+} p_{e^+}}{1 \text{ MeV}^2}\right) (\text{cm}^2) \end{aligned} \quad (2.9)$$

となる。図 (2.10) にエネルギーに対する反応断面積を示す。断面積は Bugey 実験において測定され、測定された断面積 σ_f と理論計算による値 σ_{V-A} との比は、 $\frac{\sigma_f}{\sigma_{V-A}} = 0.987 \pm 0.030$ ととてもよく一致している。

原子炉ニュートリノのエネルギースペクトルと、逆 β 崩壊の反応断面積から、観測される原子炉ニュートリノのエネルギースペクトルは以下の図のようになる。

2.2.2 太陽ニュートリノ検出原理

KamLAND において、 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノは Kamiokande、Super-Kamiokande と同様のニュートリノと電子の弾性散乱反応を用いてリアルタイムに検出する。反応式は、

$$\nu_x + e^- \rightarrow \nu_x + e^- \quad (2.10)$$

となり、すべてのニュートリノ ($x = e, \mu, \tau$) に対応する。この反応は、ニュートリノによって2種類の反応にわけられる。中性カレント反応と荷電カレント反応である。ニュートリ

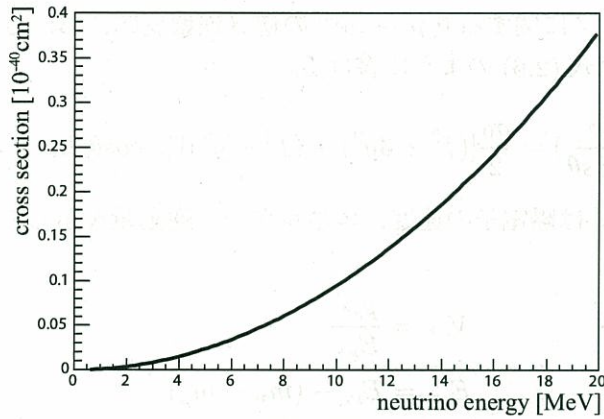


図 2.10: 逆 β 崩壊の反応断面積

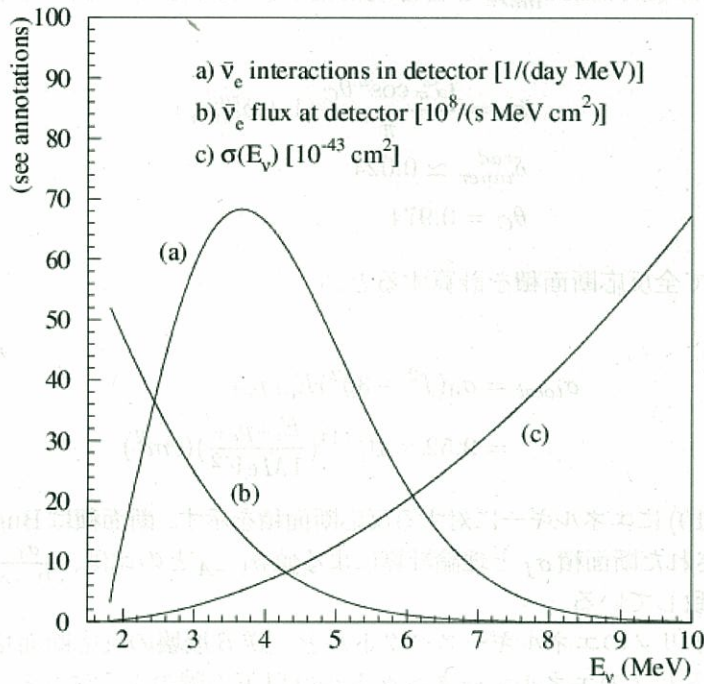


図 2.11: 観測される原子炉ニュートリノのエネルギースペクトル [13]。(b) は原子炉ニュートリノのエネルギースペクトルで (c) が逆 β 崩壊の反応断面積。(b) と (c) を掛け合わせることで、(a) のスペクトルが得られる。

ノは弱い相互作用のみをうける素粒子であり、弱い相互作用はウィークボゾンによって媒介される。ウィークボゾンには W^\pm と Z^0 の 2 種類があり、 W^\pm によって媒介される反応を荷電カレント反応、 Z^0 によって媒介される反応を中性カレント反応という。

(2.12) の左図は、 W ボゾン交換による電子と電子ニュートリノの弱い相互作用を示して

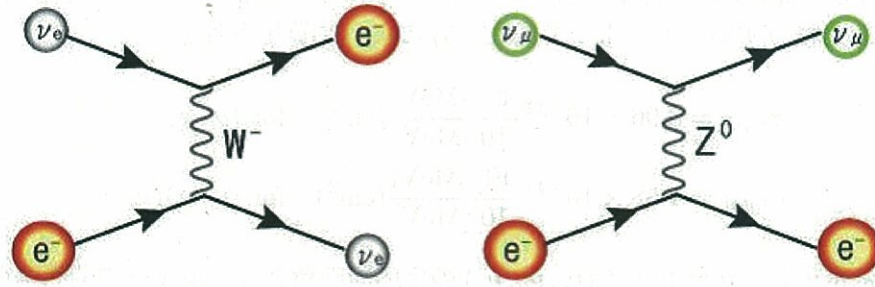


図 2.12: 荷電カレント反応 (左) と中性カレント反応 (右) のファインマンダイアグラム

いる。荷電カレント反応では媒介する W ボソンが電荷を運ぶが、中性カレント反応では Z ボソンは電荷をもたないので、反応後それぞれの粒子は変化しない。ニュートリノの電子散乱実験では、この 2 種類の反応を区別することはできない。

KamLAND では、弾性散乱で生じた反跳電子によるシンチレーション光を測定する。 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノのエネルギーは 861keV であり、反跳電子の運動エネルギー T_e はニュートリノのエネルギー E_ν に対して運動学上制限を受ける。

$$T_{max} = \frac{E_\nu}{1 + m_e/2E_\nu} \quad (2.11)$$

上記の式より $T_{max} = 665\text{keV}$ となり、 861keV の入射ニュートリノのエネルギースペクトルを反映する 665keV を最大エネルギーとする反跳電子のエネルギー分布ができる。

ニュートリノと電子の弾性散乱の反応断面積

ニュートリノと電子の反応 ($\nu + e^- \rightarrow \nu + e^-$) の散乱の断面積は標準電弱理論を用いて計算でき、その微分反応断面積は式 (2.12) のように表される。

$$\frac{d\sigma}{dT_e} = \frac{G_F^2 m_e}{2\pi} \left[A + B \left(1 - \frac{T_e}{E_\nu}\right)^2 + C \frac{m_e T_e}{E_\nu^2} \right] \quad (2.12)$$

ここで T_e 、 G_F 、 m_e 、 E_ν はそれぞれ反跳電子の運動エネルギー、フェルミ結合定数、電子の質量、入射ニュートリノのエネルギーであり、パラメータ A、B、C は、

$$\begin{aligned} A &= (g_V + g_A)^2, B = (g_V - g_A)^2, C = (g_A^2 - g_V^2) \\ g_V &= 2 \sin^2 \theta_W + \frac{1}{2}, g_A = \frac{1}{2} \quad \text{for } (\nu_e, e) \\ g_V &= 2 \sin^2 \theta_W - \frac{1}{2}, g_A = -\frac{1}{2} \quad \text{for } (\nu_\mu, e)(\nu_\tau, e) \end{aligned} \quad (2.13)$$

と定義される。 θ_W はワインバーグ角である。 $\nu + e^- \rightarrow \nu + e^-$ 反応における単ループの電弱と QCD と QED の輻射補正を考慮すると、式 (2.12) の微分反応断面積にかかっている係数は、

$$\frac{G_F^2 m_e}{2\pi} = 4.31 \times 10^{-45} \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{MeV}} \right) \quad (2.14)$$

となる。反応断面積は、電子の運動エネルギー T_e に関して 0 から T_{max} (式 (2.11) 参照) ま
で式 (2.12) を積分することによって式 (2.15) のように算出される。

$$\begin{aligned}\sigma_{total} &= 8.96 \times 10^{-44} \frac{E_\nu [\text{MeV}]}{10 [\text{MeV}]} (\text{cm}^2) \quad \text{for } (\nu_e, e) \\ \sigma_{total} &= 1.58 \times 10^{-44} \frac{E_\nu [\text{MeV}]}{10 [\text{MeV}]} (\text{cm}^2) \quad \text{for } (\nu_{\mu, \tau}, e)\end{aligned}\tag{2.15}$$

図 (2.13) に電子とニュートリノ (ν_e, ν_μ, ν_τ) の反応断面積とエネルギーの関係図を示す。 ν_e
と $\nu_{\mu, \tau}$ の断面積の違いは、 $\nu_{\mu, \tau}$ の散乱は中性カレントを通してのみ行われるのに対し、 ν_e
は中性、荷電カレントの両方が寄与するためである。 (ν_e, e) の断面積は $(\nu_{\mu, \tau}, e)$ のおよそ
6 倍である。

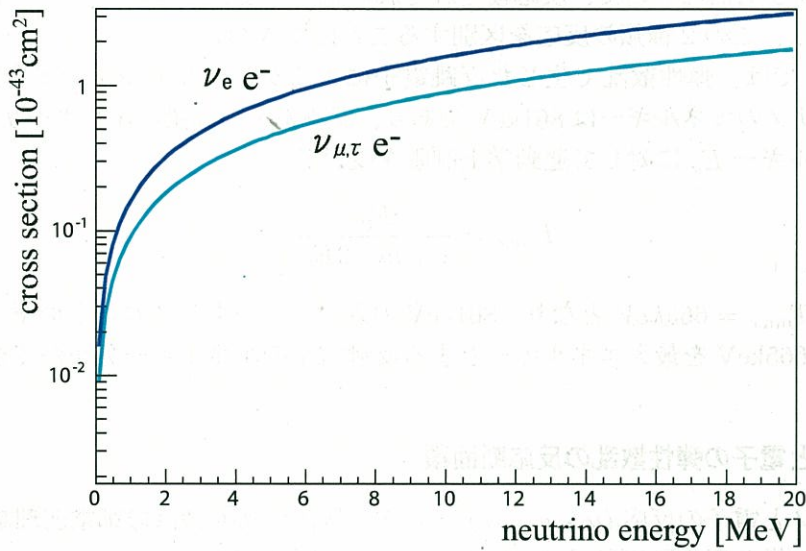


図 2.13: ニュートリノと電子散乱の反応断面積 [24]。

第3章 ${}^7\text{Be}$ 太陽ニュートリノ観測における バックグラウンド

この章では現在 KamLAND における低エネルギー領域における主なバックグラウンドについて説明する。バックグラウンドは大きくわけて3種類あり、液体シンチレータに含まれる放射性不純物、過去の純化の際に空気中から液体シンチレータに溶け込んだと考えられる放射性元素、また外部から飛来してくる μ 粒子によって生成される放射性元素となる。

${}^7\text{Be}$ ニュートリノは、現在上記のバックグラウンドに覆われており観測することができない。この章ではバックグラウンドの起源と現在の量、そして ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測するために必要とされるそれぞれのバックグラウンドの低減率を見積もる。

3.1 低エネルギー領域におけるエネルギースペクトル

現在 KamLAND で観測されている 2MeV 以下のエネルギー領域のエネルギースペクトルを、図 (3.1) に示す。図の青い線が観測されたエネルギースペクトルで、放射性元素による線は参照 [1] より得られたエネルギースペクトルを KamLAND でのビジブルエネルギー (E_{visible}) に変換し、観測されたエネルギースペクトルにフィットしたものである。太陽ニュートリノ ($\text{pp } \nu, {}^7\text{Be } \nu, \text{pep } \nu, \text{CNO } \nu$) は、標準太陽モデル (SSM BP2004) によって予測されているニュートリノフラックスを用いて KamLAND に変換したものである。

図に示すように ${}^7\text{Be}$, CNO, pep ニュートリノのスペクトルは完全に隠れている。 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノにたいしては ${}^{210}\text{Po}$, ${}^{210}\text{Bi}$, ${}^{85}\text{Kr}$, ${}^{40}\text{K}$ が大きなバックグラウンドとなっている。また、CNO サイクルのニュートリノと pep ニュートリノにたいしては、 ${}^{40}\text{K}$ と ${}^{11}\text{C}$ もバックグラウンドとなる。

以下の節でそれぞれのバックグラウンドについて議論し、低エネルギー太陽ニュートリノを観測するためにはどれぐらい低減する必要があるのかを述べる。

3.2 放射性不純物

ここでは、 ${}^{238}\text{U}$ 系列、 ${}^{232}\text{Th}$ 系列、 ${}^{40}\text{K}$ 、 ${}^{14}\text{C}$ について説明する。(U、Th 崩壊系列図については巻末の付録 B に記す。)

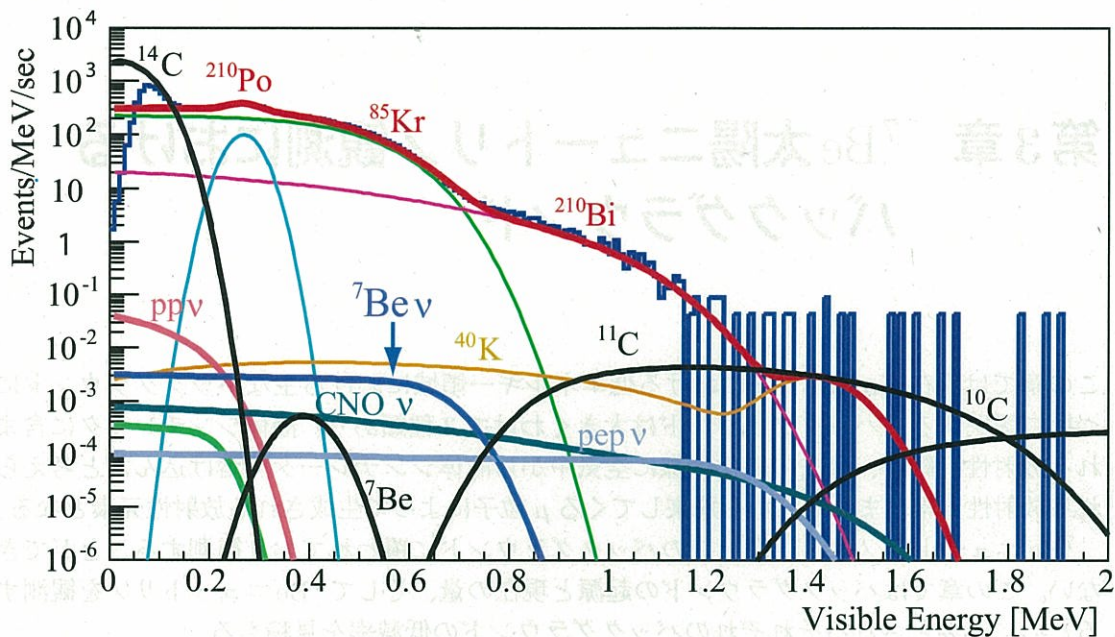


図 3.1: KamLAND でみられる低エネルギー (< 2MeV) 領域でのスペクトル [25]。

3.2.1 ^{238}U 系列

ウランは天然に存在する元素で、 ^{238}U はウランのうち存在比99.3%である¹。一般の火成岩ではウラン濃度は数ppm(1gの岩石中に数 μg)程度あり、KamLANDを覆う岩盤や石油起源の液体シンチレータにも微量含まれている。ICP-Mass²による測定によると、バルーンから0.018ppb(0.02Bq)³、バルーンを吊るすロープ(ケブラーの組み紐)から0.08ppb(0.1Bq)のウランが検出されている。 ^{238}U から ^{206}Pb まで崩壊する系列を ^{238}U 系列といい、非常に長い半減期をもつ元素を系列に含むので、恒常的に α 線や β 線を放出する源となっている。KamLAND 検出器は3年間ほぼ密閉状態にあるため、長半減期の放射性元素の間で放射平衡になっていると考えられる。半減期の違いから、

- $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Pa}$ (^{238}U : 4.468×10^9 year)
- ^{234}U (^{234}U : 2.455×10^5 year)
- ^{230}Th (^{230}Th : 7.538×10^4 year)
- $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{210}\text{Tl}$ (^{226}Ra : 1600 year)
- $^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ (^{210}Pb : 22.3 year)

のそれぞれの反応について考える必要がある。

この中で α 線は、スペクトルの形状から ^7Be ニュートリノ検出に大きな影響を及ぼすこ

¹ ^{235}U が存在比 0.7%

² Inductively Coupled Plasma-Mass:誘導結合プラズマ質量分析法、代表的な無機元素分析法で多くの元素に対して ppb レベルの超高感度分析ができる。

³ ウラン、トリウムなどの測定値は [19] 参照。

とは無いと考えられる。上記の中で問題になる可能性があると考えられるのは、 ^{234}Pa が崩壊した時の 2.27MeV の β 線、 ^{210}Bi が崩壊した時の 1.162MeV の β 線である。

$^{238}\text{U} \sim ^{226}\text{Ra}$ の反応数について、 ^{234}Pa の β 線を用いて原子炉反ニュートリノの 2002 年 3 月から 2004 年 1 月までの解析期間における、有効体積内での崩壊数の上限値を求めると $87.1[\mu\text{Bq}/\text{m}^3]$ となっており、 ^7Be ニュートリノ検出に大きな影響を及ぼす可能性は低いと考えられる。 $^{226}\text{Ra} \sim ^{206}\text{Pb}$ については、3.3 節における ^{222}Rn で詳しく述べる。

3.2.2 ^{232}Th 系列

トリウムは、アクチノイド元素⁴の中で最も多く存在する元素(前述したウランの5倍以上)であり、天然に存在するのはほとんどが ^{232}Th である。 ^{232}Th は半減期が 140 億年と ^{238}U の半減期の約 3 倍であるので、壊変量の差にそれほど違いはない。ICP-Mass による測定によると、バルーンから 0.014ppb(0.006Bq)、バルーンを吊るすロープ(ケブラーの組み紐)から 0.8ppb(0.33Bq) のトリウムが検出されている。 ^{232}Th から ^{208}Pb まで崩壊する系列を ^{232}Th 系列といい、 ^{238}U 系列と同様に長い半減期をもつ元素を系列に含む。

半減期の違いから、

- ^{232}Th ($^{232}\text{Th} : 1.405 \times 10^{10}$ year)
- $^{228}\text{Ra} \rightarrow ^{228}\text{Ac}$ ($^{228}\text{Ra} : 5.75$ year)
- $^{228}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Tl}$ ($^{228}\text{Th} : 1.913$ year)

のそれぞれの反応について考える必要がある。

^{232}Th 系列の反応数を見積もるために、 ^{232}Th 系列の下流の $^{212}\text{Bi} - ^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測を用いた。 ^{238}U 系列と同様に解析期間での崩壊数をもとめると、 $^{232}\text{Th} \sim ^{208}\text{Pb}$ では $0.287[\mu\text{Bq}/\text{m}^3]$ である。この結果より ^{232}Th 系列の元素も ^7Be ニュートリノ検出に影響を及ぼす可能性は低いといえる。

3.2.3 ^{40}K

^{40}K (カリウム⁵)は放射性金属元素であり、存在比が 0.012%と天然にもごく僅かに存在する。KamLAND では、主に液体シンチレータやバルーン、またバルーンを支えるロープ、液体シンチレータ層の中心にある温度計などに含まれている。 ^{40}K は、 1.3×10^9 年という長い半減期をもっていて、 β 崩壊 (89.28%、 $Q_{\beta^-} = 1311.09$ keV) および電子捕獲反応 (10.72%、 $Q_{EC} = 1504.9$ keV) をする。図 (3.2) に ^{40}K の崩壊過程を示す。

Flame atomic absorption⁶ で ^{40}K の分析を行ったところ、バルーンから 7.2Bq(うち γ 線 0.7Bq) の β 線と γ 線が、またゲルマニウム-ガンマ線検出器による測定より、バルーンを吊るすロープ(ケブラーの組み紐)から 31Bq(うち γ 線 3Bq) の β 線と γ 線が、存在することがわかっている。その他にも、KamLAND をとりまくコンクリートに 0.69ppm、岩石に 0.039ppm の ^{40}K が含まれていることが確認されている。このように ^{40}K はバルーン

⁴アクチノイドからアクチニウムを除いた、トリウムからローレンシウムまでの元素

⁵英名では Potassium(ポタシウム)ともいう。

⁶フレイム原子吸光分析法 : 成分の測定に用いられる分光技術の一つ

ンなどに存在していて大きなバックグラウンドとなっているので、KamLAND ではデータをとって解析をする時に、半径 6.5m のバルーンのうち中心から 4m 以内と決めて用いる (fiducial cut) という手法によってバックグラウンドをカットしている。また液体シンチレータ中に $< 2.7 \times 10^{-16} \text{g/g}$ ($< 0.063 \text{Bq/kton}$ の β 線) が存在する可能性があり、液体シンチレータの成分の中では特に PPO が ^{40}K 含有量が多いことがわかっている。

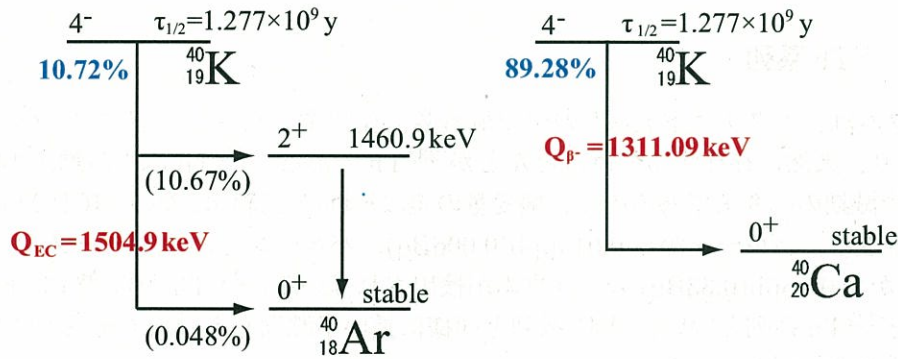


図 3.2: ^{40}K の崩壊過程

図 (3.3) に ^{40}K が CNO サイクルのニュートリノと pep ニュートリノの観測に影響してくるエネルギー領域の KamLAND のエネルギースペクトルを示す。 ^{40}K のピークは、 β 線と γ 線を重ねあわせた形になっており、太陽ニュートリノスペクトルにたいして大きなバックグラウンドになっていることがわかる。CNO サイクルのニュートリノと pep ニュートリノまで観測する場合には、 10^{-2} から余裕をもって 10^{-3} 程度減少させる必要がある。

3.2.4 ^{14}C

自然界の C(炭素) には、12、13、14 と 3 種類の炭素原子が存在しておりそのうち ^{14}C が占める割合は $1.2 \times 10^{-10}\%$ とわずかである。 ^{14}C は宇宙線ミューオンによって作られる中性子と大気中の窒素原子 (^{14}N) との核反応によって生成される。大気の上層でできた ^{14}C は CO_2 の形で大気中に一様に広がり、大気中では、宇宙線により作られる量と原子核の崩壊で壊変する量がだいたいつり合って、 $1.2 \times 10^{-10}\%$ という存在比を保っている⁷。上記の理由より、 ^{14}C は動物などの放射性炭素年代測定法としてよく用いられている。

半減期は 5730 年で β 線 (0.156MeV) を放出する。石油起源のノルマルパラフィンやブソイドクメンには ^{14}C は少ないと期待されているが、実際は KamLAND において上限値 $9.8 \times 10^2 \text{Bq/kton}$ として観測されていて、石油の精製段階で混入したかもしくは PPO に含まれていると考えられている。図 3.1 で見るとわかるように、0.3MeV 以下に大きなバックグラウンドとして存在しており、太陽ニュートリノの中でもっともフラックスの大きい

⁷実際は年代によってその量は多少異なる。

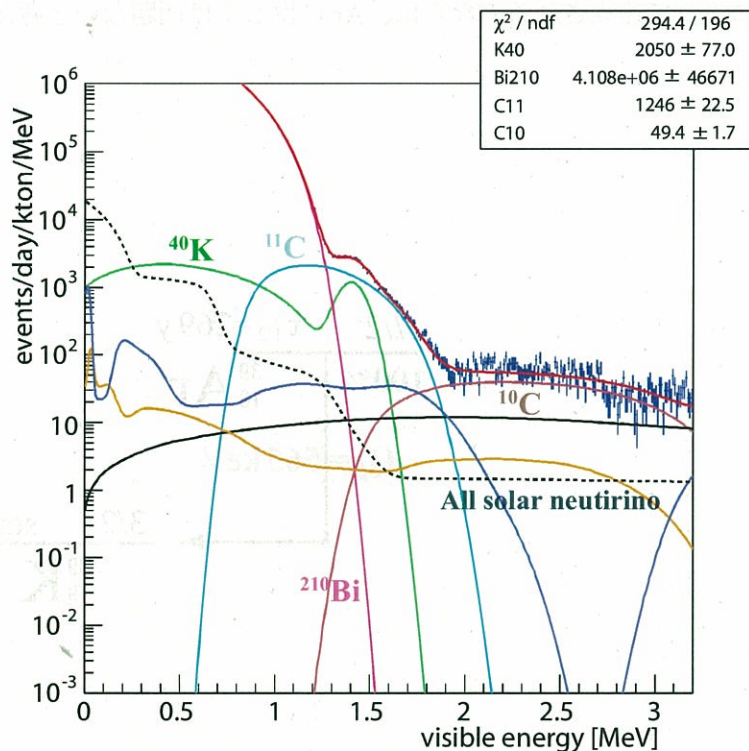


図 3.3: ^{40}K も含めた低エネルギー領域の KamLAND のエネルギースペクトル。赤い線が全体のスペクトルになるが、1.4MeV 付近に ^{40}K のピークが確認できる。 ^{10}C と ^{11}C は後述する spallation によるもの [25]。

pp ニュートリノの観測を困難なものにしている。また、 ^{14}C により ^7Be 太陽ニュートリノの反跳電子エネルギースペクトルの観測下限値が 3.0MeV 付近と制限される。

3.3 空気から混入する放射性元素

この節では、空気中から混入したと思われる放射性希ガス元素 (^{39}Ar 、 ^{85}Kr 、 ^{222}Rn) について説明する。

3.3.1 ^{39}Ar

Ar(アルゴン) は空気中に 0.93% 存在しており、希ガス元素の中ではもっとも多く空気中に存在している。 ^{39}Ar は放射性希ガス元素であり、半減期は 269 年で β 線 (0.565MeV) を放出する。KamLAND のバルーン内の有効体積 $R \leq 5.5\text{m}$ 内で、 ^{39}Ar の量の上限值は $< 144\text{Bq}/5.5\text{m}^3\text{fiducial}$ ($< 207\text{mBq}/\text{m}^3$) である。 ^7Be ニュートリノ観測のためには $< 1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ である必要があるため、もし Ar が最大値の 200mBq 程度存在する場合は 10^{-5} という除去率が必要となる。ただし、Ar は後述する Kr より軽い元素であり、また液体シンチレータへの溶解度も低く、必要とされる除去率も Kr より低いので、Kr の除去

率が純化によって達成されるのならば、Ar に関しては問題ないと考えられる。

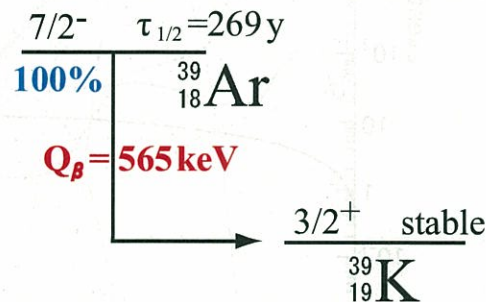


図 3.4: ^{39}Ar の崩壊過程

3.3.2 ^{85}Kr

^{85}Kr は天然には存在しない気体元素である。原子炉から使用済み核燃料を取り出すとき、化学反応性が極めて低いので容易に大気中に放出される。世界の核再処理工場では、 ^{85}Kr は除去されることなく工場排気に含まれ、排気筒から環境中に放出されている。 ^{85}Kr が生成されるメカニズムは、天然のウランのうち存在比 0.72%⁸ の ^{235}U に熱中性子を照射すると、核分裂が起こり ^{85}Kr が全体の約 0.293% 生成される。この核反応は原子力発電に利用されている。

^{85}Kr は半減期 10.76 年で、分岐比 99.566% での β 崩壊 ($Q_{\beta^-} = 687\text{keV}$) と、分岐比 0.434% での β 崩壊 ($Q_{\beta^-} = 173\text{keV}$) と γ 崩壊 (514 keV) をする。バルーン内の有効体積 $R \leq 5.5\text{m}$ 内で、 ^{85}Kr の量は $318 \pm 67\text{Bq}/5.5\text{m}^3$ fiducial ($456 \pm 96\text{mBq}/\text{m}^3$) である。図 (3.1) よりもわかるように、 ^7Be ニュートリノを観測するためには $1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度まで低減する必要があり、現在の Kr レベルから $10^{-5} \sim 10^{-6}$ の減少率が必要である。本論文では、この Kr の除去に関して 5 章で述べている。

⁸他に天然のウランは存在比 99.275% の ^{238}U と 0.005% の ^{234}U

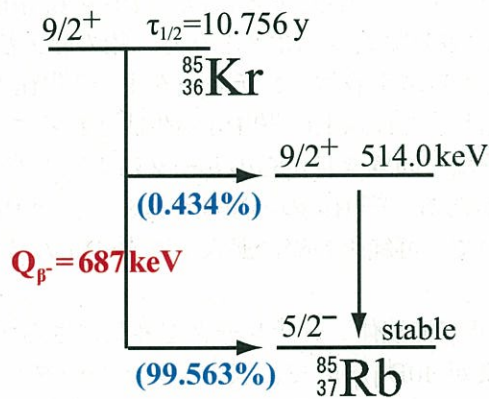


図 3.5: ^{85}Kr の崩壊過程

3.3.3 ^{222}Rn

^{222}Rn は連鎖的に崩壊するウラン系列の中間に位置する希ガス元素である。主に大地を構成する土壌・岩石から空气中に放出される。土壌や岩石組成が地域により異なるので、大気中のラドン濃度には地域性があるが平均すると $30\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度である。また特に地下ではラドンが濃縮され濃度が高くなることが知られており、神岡鉱山内では約 $3000\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度と大気中と比べて 100 倍ラドン濃度が高い。現在 KamLAND エリアではこの高いラドン濃度を防ぐために、外気を導入することによりエリア内の環境ラドン濃度を外気と同程度に減らしている。

^{222}Rn は半減期 3.82 日で α 崩壊し、 ^{218}Po になる。その後、半減期の短い ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{214}Po と順次崩壊していき、最終的に長寿命の ^{210}Pb (半減期 22.3 年) に崩壊する。さらに ^{210}Pb は、 ^{210}Bi に β 崩壊 ($Q_{\beta^-} = 63.5\text{ keV}$) した後、半減期 5 日で β 崩壊 ($Q_{\beta^-} = 1.162\text{ MeV}$) し ^{210}Po になる。そして最後に ^{210}Po は半減期 138 日で α 崩壊 ($Q_{\alpha} = 5.407\text{ MeV}$) し安定状態の ^{206}Pb となる。図 (3.6) に ^{210}Pb から ^{206}Pb への崩壊過程を示す。

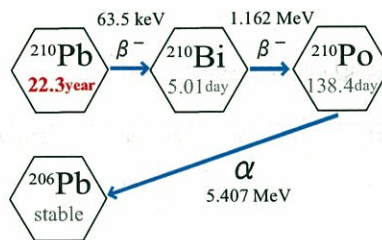


図 3.6: ^{210}Pb の崩壊過程

この崩壊過程の中で、特に ^{210}Bi が崩壊したときの β 線(1.162MeV)が、図(3.1)よりわかるように ^7Be ニュートリノを覆い隠すバックグラウンドとなっている。 ^{210}Bi を恒常的に生み出す半減期22.3年の ^{210}Pb を液体シンチレータから取り除く必要がある。バルーン内の有効体積 $R \leq 5.5\text{m}$ 内で、 ^{210}Bi の量は $37.1 \pm 2.8\text{Bq}/5.5\text{m}^3\text{fiducial}$ ($53.2 \pm 4.0\text{mBq}/\text{m}^3$)であり、 ^7Be ニュートリノを観測するには ^{210}Pb を $0.5\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ 以下に低減する必要があるので必要とされる低減率は、 $< 10^{-5}$ となる。鉛の除去法については6章で詳しく述べる。

また、 ^{210}Pb を生み出す液体シンチレータ中の ^{222}Rn は現在ではほぼ崩壊しきっているので($< 1\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)、これ以上の ^{210}Pb が生成されることは無いが、液体シンチレータの再純化の際に配管などの継ぎ目からのリークによって液体シンチレータが ^{222}Rn にまた汚染される可能性がある。 ^{222}Rn の半減期が3.8日、 ^{210}Pb の半減期が22.3年と約2000倍程度の差があるので、再純化の際に混入する ^{222}Rn の量を $1\text{mBq}/\text{m}^3$ 以内に抑える必要がある。

KamLANDエリアで液体シンチレータを外気にさらすと、坑内(KamLANDエリア内)の平均ラドン濃度が $40\text{Bq}/\text{m}^3$ で、液体シンチレータへの溶解度を考慮すると約10倍の $400\text{Bq}/\text{m}^3$ となる。このラドン濃度から $1\text{mBq}/\text{m}^3$ まで、約 10^{-5} の低減率が必要となる。実際には液体シンチレータを再純化する際外気には触れないようにし、かつ配管内は窒素充填をするのでここまでラドン濃度が高まることはなく、リーク量を $0.1\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度と見積もると、必要とされるラドンの低減率が約 10^{-3} となる。ラドンの除去法については、5章で詳しく述べる。

最後に ^{222}Rn がいつ液体シンチレータ中に入ったかを表す、 ^{222}Rn の下流に存在する ^{210}Po のKamLAND検出器内でのレートの時間変動を図(3.7)に示す。この図より、KamLAND検出器に液体シンチレータを入れた2001年5月から9月の間に、 ^{222}Rn が空気中から混入し平衡状態が崩れたと考えられる。

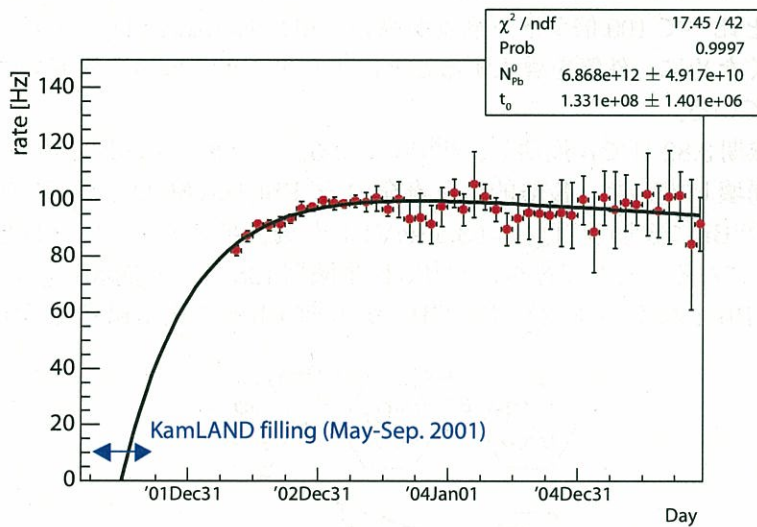


図 3.7: ^{210}Po のレートの時間変動[11]。

3.4 ミューオンにより生成される放射性元素

0.34Hzの高エネルギーの宇宙線ミューオンが検出器内で原子核破砕反応 (spallation) を起こし、中性子や様々な不安定核 (spallation products) を生成する。表 (3.1) にそれぞれの放射性元素についてまとめる。

元素	線源	寿命	エネルギー (MeV)	反応数 (events/day/kton)
^{11}C	β^+	29.4min	0.9602	1039
^{10}C	β^+	27.8sec	1.91	139
^6He	β^-	0.116sec	3.5	19
^{12}B	β^-	0.291sec	13.4	63
^8B	β^+	1.11sec	13.7	8
^9C	β^+	0.1825sec	16.0	5.5
^8Li	β^-	1.21sec	16.0	5
^8He	β^- (84%) $\beta^- + n$ (16%)	0.1717sec	10.7	2.4
^9Li	β^- (50%) $\beta^- + n$ (50%)	0.2572sec	13.6	

表 3.1: 宇宙線 μ 粒子に生成される放射性元素 [14]。表上部が中性子を放出しない不安定核で表下部が中性子を放出する不安定核を示している。

これらの大量に生成された励起原子核が β 崩壊や γ 崩壊して電子や γ 線を放出する。この反応により生成される放射性元素は大きなバックグラウンドではあり、特にこの中で中性子を放出するものは遅延同時計測の深刻なバックグラウンドとなっている。また、高エネルギー領域ではミューオンを先発信号とし、その際に放出される中性子を後発信号とするバックグラウンドも存在する。一方で、生成された中性子が陽子や炭素原子に捕獲され放出される γ 線はエネルギーが正確にわかっており、検出器内でほぼ一様に分布しているので、キャリブレーションにも用いられている。

この中でもっともエネルギーが低く反応数が多い ^{11}C は、0.8MeV 付近で ^7Be 太陽ニュートリノのスペクトルと重なる。これによって、 ^7Be 太陽ニュートリノの観測される上限値が 0.8MeV と制限される。

第4章 蒸留精製法

この章では最初に簡単に蒸留法以外の今までにおこなわれてきた液体シンチレータの純化の方法とその結果についてふれ、その後放射性不純物の除去のために用いる蒸留法について、その原理と蒸留に関する液体シンチレータの性質を述べる。

4.1 液体シンチレータの純化方法と放射性元素の除去結果

液液抽出法

液液抽出法はすでに(2.1.5)の現在の純化装置の節で述べたように、純水と液体シンチレータを混ぜ合わせ、純水に分配係数の違いを利用してイオン性の不純物を純水に移す方法である。

過去の実験において、蒸留水と液体シンチレータを混合攪拌した結果得られた ^{212}Pb の除去率は、2割弱であった。

濾過法

濾過法には、濾紙の孔径より大きな粒子を掬い取るという効果と、濾紙の内部への吸着という効果の二つの効果がある。

^{212}Pb の除去の実験を孔径 $7\mu\text{m}$ 、 $4\mu\text{m}$ 、 $1\mu\text{m}$ 、 $0.2\mu\text{m}$ という4種類の濾紙で濾過をおこなった結果、孔径に除去率の依存性はあまりなく、それぞれ1回の濾過で3割の除去、2回の濾過で1割¹の除去、3回の濾過で1割の除去という結果が得られている。ただし、除去効率は回数を重ねると若干悪くなる傾向があることと、例え2回目以降の除去率をその後も維持できるとしても目標とする 10^{-5} まで除去するにはかなりの回数を重ねる必要あると思われる。

吸着法

一般に鉛イオンは、化学操作に用いる容器への吸着が激しいことが知られており、逆にこの性質を利用して吸着剤を用いて鉛を除去する方法が吸着法である。

SiO_2 微粒子であるAEROSIL²を用いて ^{212}Pb を吸着させて除去する実験がおこなわれた。この SiO_2 粉末は表面積が大きく吸着剤としてよく用いられている。このAEROSIL

¹1回目の結果からさらに1割の除去という意味で、最初からは4割の除去になる。

²AEROSILは本来ドイツのDegussa社の登録商標であるが、無定形コロイド状シリカを表す物質名として定着している。

を液体シンチレータに混ぜては取り除くという作業を繰り返した結果、液体シンチレータから除去できた ^{212}Pb は9割程度でとどまり、これ以上の除去率は得られなかった。

4.2 蒸留法とその原理

この節では、蒸留法の基本的な説明、そして特殊な液体である液体シンチレータの蒸留をする上で気にすべき性質、そして液体シンチレータに存在する不純物の蒸留法による除去原理を述べる。5章で触れる ^{85}Kr と ^{222}Rn は希ガス元素であり、6章で述べる ^{210}Pb のような沸点の高い金属元素とは蒸留によって除去される原理も異なる。そのため、それぞれの除去原理について、4.1.3で述べる。

4.2.1 蒸留法

蒸留とは、蒸気圧の差を利用して混合物の特定成分を濃縮していく方法であり、化学の分野においては基本的な技術である。ここでは本論文において用いている蒸留技術のうち分別蒸留(分留)と真空蒸留について示す。

分別蒸留 (fractional distillation)

分留について述べる前に、その元となる単蒸留 (simple distillation) について簡単に説明する。一旦液体から蒸発した気体が蒸留塔内で凝縮して液体となることなく留出するような蒸留を単蒸留という。中が中空の蒸留塔を使用している場合、その蒸留はほぼ単蒸留と見なすことができる。単蒸留では分離能力が低いため、化学工業では精製よりも溶媒の回収などに使用される。この操作で不純物と目的物が完全に分離するには、目的物と不純物との沸点の差が著しく大きいか、あるいは不純物が不揮発性である場合だけである。実際に、この操作では液体シンチレータから不純物を目的とするレベルまで除去することが不可能であった。そのために導入したのが、分留である。以下では分留操作の効率について説明する。

分離したい混合物を加熱すると、液面から各成分が徐々に蒸発し各成分の蒸気圧の和が系の圧力と一致すると沸騰が始まる。そのとき、発生する蒸気の組成は Raoult の法則に従って液面の成分組成と、その温度での各成分の蒸気圧の両方から決定される。ここで、A、B の2成分からなる液体がその蒸気と平衡状態にある理想系を考え、A、B のその温度における蒸気圧を P_A 、 P_B とし、A、B の液相におけるモル分率を x_A 、 x_B 、A、B の蒸気相におけるモル分率を y_A 、 y_B とする。

そうすると Raoult の法則と Dalton 分圧の法則より、

$$\begin{aligned}(P_A + P_B)y_A &= P_A x_A \\ (P_A + P_B)y_B &= P_B x_B\end{aligned}\tag{4.1}$$

と表される ($P_A + P_B = P_{\text{全圧}}$)。 $x_A + x_B = 1$ 、 $y_A + y_B = 1$ なので、これを用いて式(4.1)の上式と下式を辺々比をとると、

$$\frac{y_A}{1 - y_A} = \frac{P_A}{P_B} \cdot \frac{x_A}{1 - x_A}\tag{4.2}$$

となる。ここで、 $\alpha = P_A/P_B$ は比揮発度という。成分 A を B に比べて低沸点成分であるとする、 $\alpha > 1$ であり、 $y_A > x_A$ となり、液相と平衡にある蒸気を液化すれば元の液相におけるモル分率よりも大きくなる。このような気化と液化の過程が n 回繰り返されたとき、液相と平衡にある蒸気相の A のモル分率を y_{A_n} とすれば式 (4.2) より、

$$\frac{y_{A_n}}{1 - y_{A_n}} = \alpha^n \cdot \frac{x_A}{1 - x_A} \quad (4.3)$$

の関係が得られる³。この式より n が十分に大きい場合、沸点の低い成分 A が B と分離され濃縮されることがわかる。理想混合物の場合には、 α^n のことを濃縮係数といい分留操作の効率を表す。比揮発度 α は系に固有の値であり、これが十分に大きいと単蒸留が可能となる。混合物の沸点の差が小さいときは α が小さくなるがこの場合は、 n を大きくする必要はある。

実験的には、蒸留フラスコの上部に分留カラムをつけ、上部に冷却器をおき、凝縮液の大部分をカラム内に戻し上昇する蒸気をこの還流液と十分に接触させ、気化と液化の過程を繰り返すと、 n の値が大きくなり分離効率がよくなる。この気液平衡の 1 つ 1 つの単位が理論段 (theoretical plate) で、分留カラム内の理論段を理論段数といいカラムの性能を表す。蒸留フラスコは 1 理論段に相当するので、理論段数 n のカラムを用いた場合は蒸留器全体で $n+1$ となる。

分留効果を十分に上げるためには、カラム内で上昇する蒸気と下降する液体が激しく接触して、気液の平衡が達成されなければならない。分留装置ではカラムが最も重要な部分である。分離効率を上げるための条件を以下にまとめる。

- (1) カラムからの熱損失を抑える。
- (2) 単位時間当りの蒸気上昇量、蒸留操作中カラム内に停滞する液量を小さくする。
- (3) カラムに還流する液量と留出液量の比である還流比を大きくする。

(1) は、カラムから熱が損失すると系全体の熱の損失につながりカラムの効率を著しく下げるからである。カラムは外部から保温する必要があり、本論文において用いられている蒸留装置では断熱真空カラムを用いて熱の損失を最大限少なくしている。(2) は、蒸気上昇量が大きくなると操作時停滞液量とカラムの下部と上部との圧力差 (圧力損失) が大きくなり、また蒸気上昇量と理論段数が同じ 2 つのカラムでは停滞液量が小さい方が分留効果が高いからである。ただし、蒸気上昇量を小さくすると蒸留に要する時間が長くなるので KamLAND のように大容量の液体を蒸留する場合は制限もある。操作時停滞液量を小さくするにはカラムの形状や後に述べる充填物について注意する必要がある。(3) は、気液平衡状態から留出させる液量を多くすると平衡状態が破れ分留の効果に影響を与えるからである。ただしこれも (2) と同じように大容量の液体を蒸留する場合には時間の関係上あまり還流比を大きくすることはできない。そのため、理論段数の大きなカラムを用いることで分留の効果を下げずに蒸留に要する時間を短縮する。

次に用いている分留カラムについて説明する。本論文における実験では 2 種類のカラムを用いており空管と充填カラムである。空管は最も簡単なカラムで、中空のガラス管を用

³一般に Fenske の式と呼ばれる。

いる。停滞液量と圧力損失は小さいが、還流液と蒸気との接触面積が小さいので分留効率は悪い。単蒸留の効率の確認用に実験には用いている。充填カラムはカラム内に充填物をつめることで、還流液と上昇蒸気との接触面積を大きくして分留効率をあげるカラムである。一般に停滞液量、圧力損失が大きいのが欠点ではあるが効率のよいものが簡単に作製できるので、大量の試料を蒸留する必要がある時によく利用される。有効な充填物の条件は、一様に充填され充填物間に適度の空隙ができることで、できるだけ停滞液量、圧力損失が小さい中で蒸気上昇量を大きくしたものである。

本論文における実験では、次節で述べる小規模蒸留装置ではステンレス製のスポンジを充填物として使用しており、テストベンチでは図(4.1)に示すようなスルザーパッキンを使用している。スルザーパッキンはいくつもの波型に折り曲げた金属板を何枚も束ねたものを蒸留塔の内径に合わせて整形したものである。

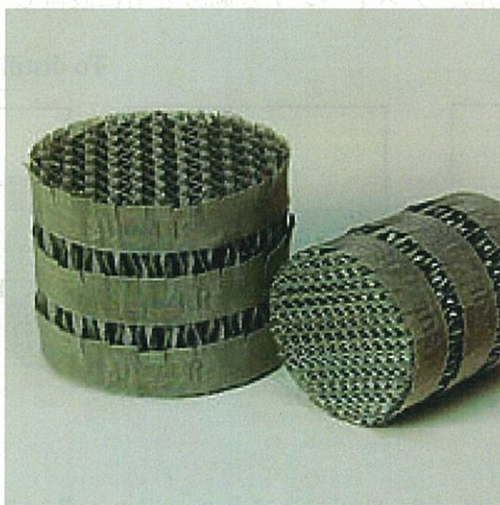


図 4.1: スルザーパッキン (Sulzer packing)

これらのような充填カラムを用いて分留する場合には、留出液をとりだす前に還流液がすべてカラムに戻る全還流の状態にして、蒸留フラスコをカラム内の液が降下できない位まで強く加熱し、カラム内の充填物の表面が液で覆われるようにする操作 (preflooding) を行うことで最高の分留効率が得られる。

真空蒸留 (vacuum distillation)

沸点の高い物質を常圧で蒸留すると分解を起こし変質したり、また不純物が含まれる試料を蒸留する時、その不純物が触媒となり目的物の分解を促したりすることがある。また高温ということより安全性の問題もある。このような場合に、沸点を下げる目的で蒸留系内を減圧にして蒸留を行うことを真空蒸留という。液体シンチレータの中に比較的沸点が高い成分 PPO(沸点が常圧で 360 度) が存在することや、他の成分も含めて高温による液体シンチレータの変質の可能性を考慮して、真空蒸留法を選択している。具体的な液体シンチレータの蒸留温度等は次節で述べる。

圧力が高い場合には圧力変化が沸点に大きな影響を与えないが、真空蒸留をする時、真空度が高まるにつれて微小の圧力変化に伴って沸点が大きく変化する。そうすると、蒸留が不安定になり突沸や flooding⁴ が起き、蒸留の効率が落ちることが予想される。そのため、真空蒸留中はできるだけ最初に設定した圧力を変化させないように維持することが重要となる。圧力は、真空ポンプによって自動的に一定圧力を維持できるものの、その一定圧力にも幅(ポンプの性能にもよるが 1 ~ 5hPa ぐらい)があり真空ポンプが作動する瞬間に蒸留状態が不安定になることがある。そのため、図(4.2)に示すようなバッファータンクを真空ポンプの外側にとりつけた。真空ポンプが直接蒸留系内を真空にひかず、まずこのバッファータンク内を真空にひき、そしてバッファータンクが蒸留系内と同じ圧力になるように徐々に気体をひく。このバッファータンクのおかげで、蒸留系内が急激に圧力変化を起こさないようになっているのである。このバッファータンクは、4.2 節の蒸留装置で説明する小規模蒸留装置、テストベンチと両方ともに設置している。

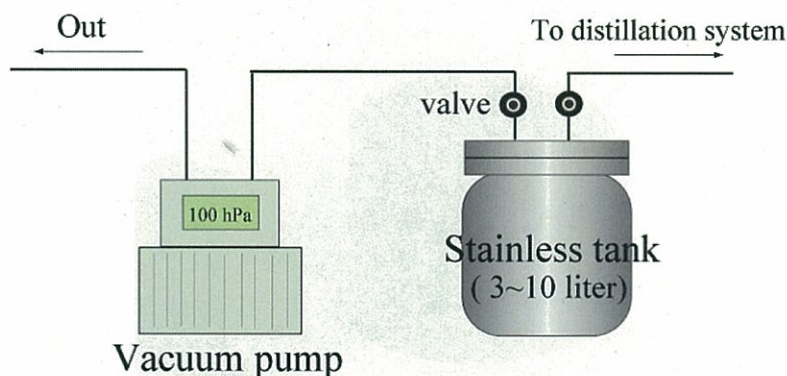


図 4.2: 真空ポンプとバッファータンク

4.2.2 液体シンチレータの性質

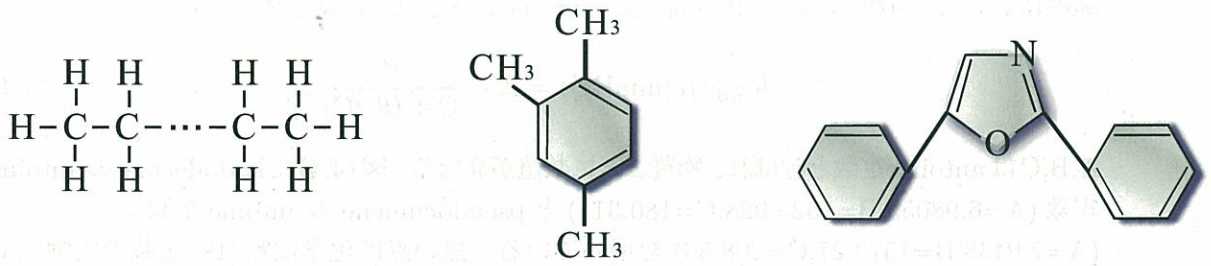
KamLAND の液体シンチレータの組成を図 4.3 に示す。全体積のうち 80%がドデカンで、20%がプソイドクメン、そして発光剤として PPO が 1.5(g/l) 溶かされている。PPO⁵ は、水にはほとんど溶けないが、含水アルコールや有機溶媒によく溶ける。放射線の照射で 366nm に極大波長を持つ蛍光を発する性質がある。

KamLAND の液体シンチレータは図(4.3)のような 3 種類の物質から構成されている。実際に蒸留法を用いて液体シンチレータを純化する際は、それぞれの物質の沸点や融点を考慮する必要がある。表(4.1)にその値について示す。

表からわかるように、dodecane と pseudocumene は常温では液体で PPO は固体である。PPO は 360°C と比較的高い沸点をもち、pseudocumene は 500°C で発火するので高温で蒸留するには注意が必要となる。実際は、安全のため、また高温で熱されることによる液体シンチレータの性質の変化を避けるために、蒸留装置内を減圧して蒸留を行うので

⁴還流液が充填物上やカラムのくぼみなどで液化し停滞液となっている状態

⁵DPO とも言う。



Dodecane (C₁₂H₂₆) : 80%

Pseudocumene : 20%
(1,2,4-Trimethyl Benzene)

PPO : 1.5 g / l
(2,5-Diphenyloxazole)

図 4.3: 液体シンチレータ組成

	dodecane	pseudocumene	PPO
沸点 (°C at 1atm)	216	169	360
融点 (°C at 1atm)	-10	-44	72
密度 (g/cm ³ at 15°C)	0.78	0.88	—

表 4.1: 液体シンチレータの性質

蒸留温度は全体的に低くなる。図 (4.4) に減圧したときの圧力と沸点の関係を知るために、dodecane と pseudocumene の蒸気圧曲線を示す。

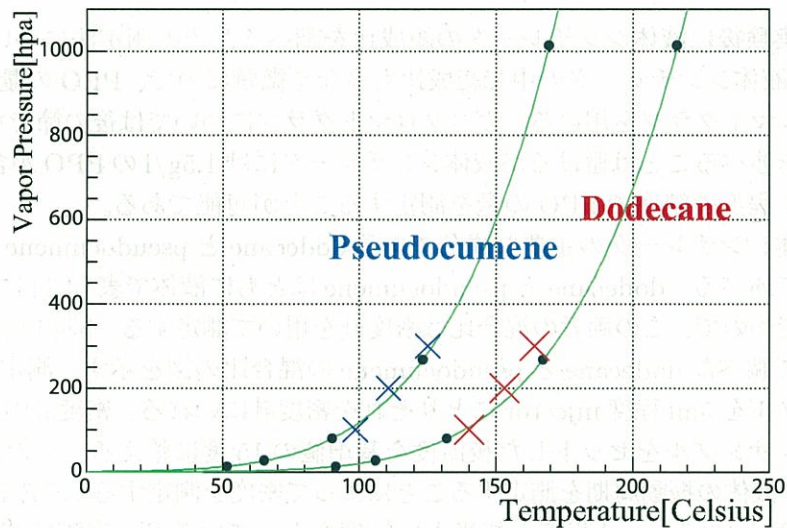


図 4.4: dodecane と pseudocumene の蒸気圧曲線

緑の線が蒸気圧の温度変化を表す理論曲線で、antoine 式といひ 1~1500mmHg の圧力

範囲において一般的によく用いられる。antoine 式を式 (4.4) に示す。

$$\log_{10}(p [\text{mmHg}]) = A - \frac{B}{C + (\theta \text{ } ^\circ\text{C})} \quad (4.4)$$

A,B,Cは antoine 定数と呼ばれ、物質ごとに数値が異なる。図 (4.4) では dodecane の antoine 定数 (A=6.98059,B=1625.928,C=180.311) と pseudocumene の antoine 定数 (A=7.0438,B=1573.27,C=208.56) を用いている。黒い点は化学便覧 [18] 記載の実験値であり、青い点と赤い点は実際に蒸留装置⁶ を用いて測定した値である。理論曲線とのわずかなずれは、温度計の較正のずれや、蒸留している最中の温度のふらつきによるものと考えられる。本論文において実験においてよく用いられる圧力と、その時の dodecane、pseudocumene の沸点について antoine 式からもとめた値を表 (4.2) に示しておく。

	dodecane	pseudocumene
1013 hPa(1 atm)	216.3	169.4
100 hPa	138.2	95.8
37 hPa	113.3	72.4
20 hPa	99.8	59.6

表 4.2: dodecane と pseudocumene の圧力と温度の関係

液体シンチレータ成分の混合比の測定法

蒸留後や実験後に液体シンチレータの組成比を調べるための測定法について説明する。PPO の量は液体シンチレータの中で組成比も少なく微量なので、PPO の量を測定するにはガスクロマトグラフを用いる。ガスクロマトグラフについては後の節でも触れるので⁷ 詳しいことを述べることは避けるが液体シンチレータには 1.5g/l の PPO が含まれており、(1.5±0.3)g/l 程度の精度で PPO の量を測定することが可能である。

次に、液体シンチレータの主要な成分である dodecane と pseudocumene の混合比の調べ方について述べる。dodecane と pseudocumene はともに液体で表 (4.1) に示すように異なる密度を持つので、この両者の混合比は密度計を用いて測定する。図 (4.5) に密度計と密度計を用いて調べた dodecane と pseudocumene の混合比の図を示す。測定方法は、測定したいサンプルを 5ml 程度 injector にとりそれを密度計に入れる。密度計内部は U 字管になっており、サンプルをセットした後温度を基準値の 15 度に整える。その後 U 字管を振動させ、その液体の振動周期を測定することによって密度を測定するしくみになっている。密度計の精度は 10⁻⁵g/cm³ 程度と相当よい精度をもっているが、実際は液体シンチレータの成分のうち pseudocumene の高い揮発性のために空気中に放置すると pseudocumene が揮発し減ってしまうので、その誤差が大きい。結果として、dodecane と pseudocumene の混合比は 1%程度の精度で測定される。1%の誤差は実験結果には影響を与えないので、今後の実験ではこの密度計を用いて混合比を測定する。

⁶蒸留装置は 4.2.1 節で述べる小規模蒸留装置を用いた。

⁷ただし後の節で述べるガスクロマトグラフとは使用法が異なっているので注意。

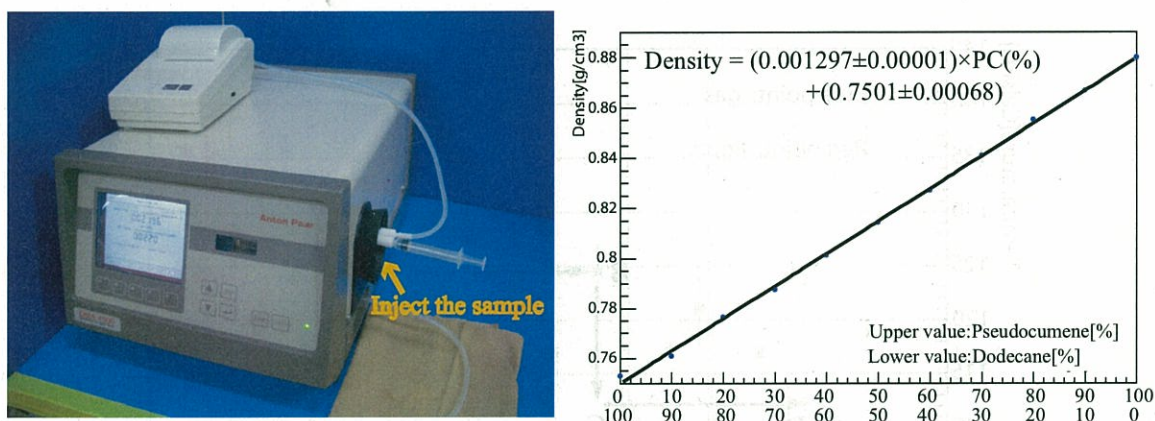


図 4.5: 密度計 (左) と dodecane と pseudocumene の混合比と密度の関係 (右)

dodecane と pseudocumene の沸点と組成の関係

dodecane と pseudocumene の平衡状態での気相、液相の混合比と温度との関係を調べるために、中空のカラムを用い様々な混合比の液体を単蒸留した。実験装置は次節で説明する小規模蒸留装置を用い、単蒸留にするため充填物は取り除いた。実験条件は蒸留系を圧力 100hPa に保ち、様々な混合比の dodecane と pseudocumene を蒸留した。蒸留フラスコ内には最初 100ml セットし、10ml 程度蒸留されたところで蒸留を終了し、その時の蒸留液とフラスコ内に残った残留液の混合比を密度計を用いて測定した。蒸留液の混合比を平衡状態に達しているときの気相の混合比、また残留液の混合比を液相の混合比と近似できる。それぞれ測定した結果をその結果を図 (4.6) に示す。緑の線は蒸気圧から計算した理論曲線と赤い点がこれに沿って分布しているのがわかる。青い点が気相、赤い点が液相の混合比である。例をあげると A 点では 80:20(dodecane:pseudocumene) の混合物を蒸留しているが蒸留後の液体は B 点の 44:66 に変化している。そしてその時の残留物の混合比は 78:22 であり、低沸点成分の pseudocumene が濃縮されているのがわかる。単蒸留では、78 : 22 → 44 : 66 の濃度変化だったが、図 (4.6) を用いて理論段数が 2 段の場合の濃度変化をシミュレーションしてみると、還流液は A 点から B 点、C 点から D 点と連続的に変化し、濃度変化は 78 : 22 → 44 : 66 → 17 : 83 となる。このように理論段数を増やすことで混合物をより分離することができるのがわかる。すでに述べたスルザーパッキンは塔を高くすることでより多く積むことができ、テストベンチでは理論段数を 20 段まで増やすことができる。

4.2.3 蒸留法による不純物の除去原理

ここでは、4.1.1 と 4.1.2 で述べた蒸留法の基礎と液体シンチレータの性質を踏まえて、実際に液体シンチレータから取り除く必要がある不純物について除去原理を考える。

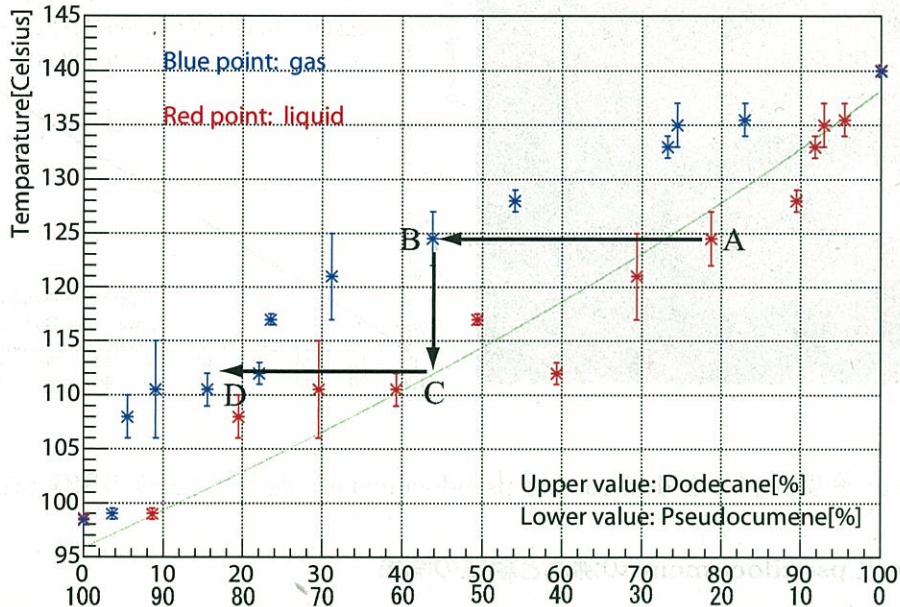


図 4.6: dodecane と pseudocumene の気液相関図

金属元素の除去原理

液体シンチレータに比べ沸点の高い金属元素 (Pb、K)⁸ の除去について考える。4.1.1 で述べたようにより低沸点成分である物質のほうが濃縮され蒸留されるので、液体シンチレータを蒸留した場合 Pb や K は分留カラムに残り液体シンチレータが受け器に蒸留されると考えられる。図 (4.6) で示したようなグラフを考えた場合、dodecane と pseudocumene よりはるかに Pb や K のほうが沸点が高いため分離はより容易であると思われる。ただし、3 章で述べたように Pb の必要とされる除去率は 10^{-5} と非常に小さいので大きな理論段数が必要とされる。

希ガス元素の除去原理

液体シンチレータにくらべ沸点が低く、常温常圧では気体である Rn や Kr がどのように除去されるのだろうか。⁹ 蒸留の原理的には沸点が低いほうが蒸留されるが、気体である Rn や Kr は凝縮しないので蒸留されることはない。原理的には、液体シンチレータを熱することで液体シンチレータへ溶存できる Rn, Kr 濃度がさがり一定量追い出され、蒸留系が真空に保たれていることより真空ポンプによって系外に排気される。また蒸留フラスコの温度があがり液体シンチレータの沸点に達し、分留カラム内で還流状態に達した場合、蒸留塔上部の還流させるための冷却器で液体シンチレータ成分は凝縮されるが Rn や

⁸ 大気圧で Pb は 1750 度、K は 765.5 度

⁹ 融点は、Rn が -71 度で Kr が -156.6 度

Krは凝縮されないののでそのまま系外に排出される。理論段数が多いほうがより分離がよくなるかという、気液の接触面積を増やすことで蒸気が上昇して排気される場所を上部から降りてくる液体にとりこまれる可能性があるので一概によくなるとはいえない。どのような蒸留条件にすればより希ガス元素と液体シンチレータの分離効率がよくなるのかを調べるのが本論文の主な目的の一つである。

また KamLAND では希ガス元素の除去に関しては液体シンチレータに窒素パージをすることで溶存希ガス元素を追い出す方法もとることを予定している。

4.3 蒸留装置

ここでは、実際に実験に使用した蒸留装置について説明する。

4.3.1 小規模蒸留装置

最初に蒸留が液体シンチレータの不純物をどの程度除去するのか蒸留の効果を確認するために導入したのが図(4.7)にある装置である。図では、左に装置の実際の全体図を、右に装置の模式図を示している。

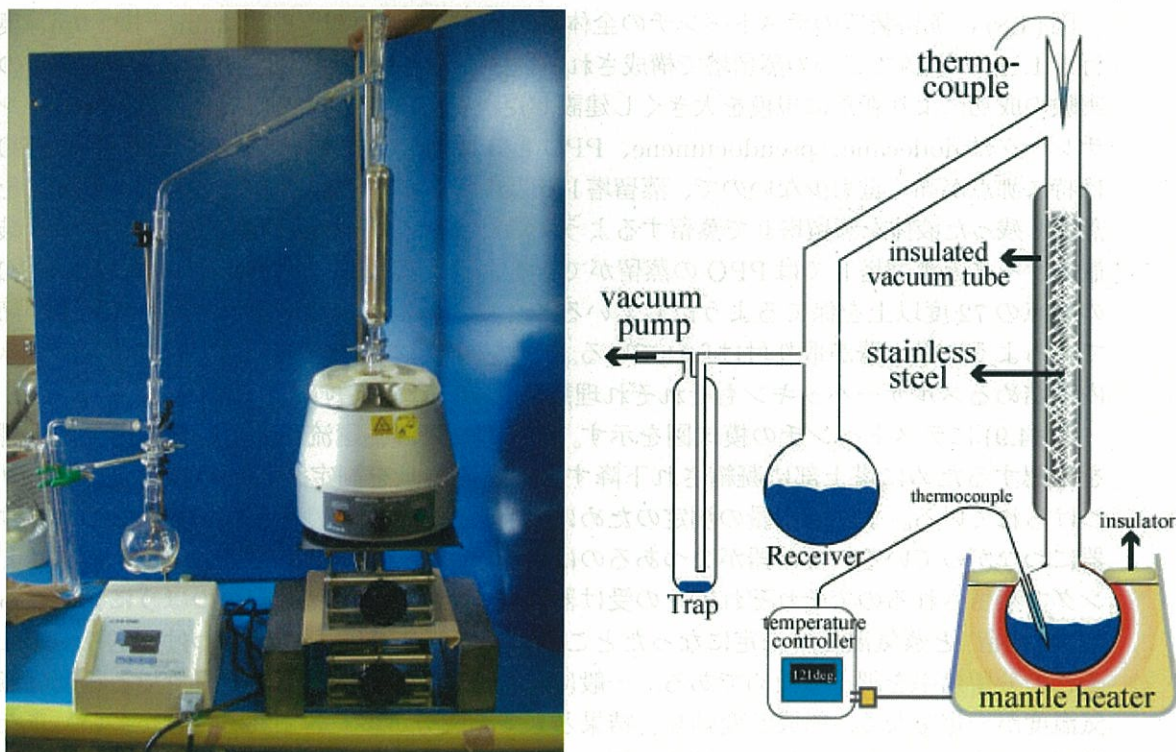


図 4.7: 小規模蒸留装置 (左) とその模式図 (右)

まず装置の説明をすると、図(4.7)の mantle heater に設置しているフラスコが蒸留フラスコでこれに液体シンチレータなどのサンプルをセットする。フラスコには液体の温度

を測るため、熱電対をいれる先を閉じたスポイトの形をした細いガラス管をセットしている。ガラス管には熱伝導をよくするため、シリコンオイルを少量いれてあり温度調整器で液体温度をモニタリングする。温度調整器は設定された温度になるように mantle heater のスイッチのオンオフを繰り返し液体の温度を調整する。フラスコ上部の蒸留カラムは、断熱真空管でできておりその中には充填物としてステンレススチール製のタワシを詰めている。蒸留法のところで述べたように、このステンレススチールには蒸留の理論段数を増やす効果がある。また、蒸留カラムの塔頂部には蒸留フラスコにつけてあるのと同様の熱電対を図のように設置してあり、実際に蒸留が行われている時の液体の温度を測定できるようにしている。この蒸留装置には冷却管は特につけてはいないが、断熱真空管より上部は外気によって自然と冷却されており蒸留自体は非常にスムーズにおこなえる。蒸留された液は受け皿となるレシーバーに流れる。また、レシーバー上部には真空ポンプにつながる管があり、蒸気が真空ポンプまでひかれないようにトラップを設置している。

この装置では、ステンレススチールの理論段数の不定性や、蒸留カラムが若干短いため fladding の影響が大きいことなどの欠点もあるが、蒸留の効果をまず知るためや蒸留のパラメータの影響(温度や圧力など)を簡単に見るのに適している。

4.3.2 テストベンチ

図(4.8)に蒸留装置のテストベンチの全体図を示す。大きさは、高さ 3.3m、横 1.9m、奥行き 1.1m の装置で二つの蒸留塔で構成されている。テストベンチは、小規模蒸留装置での実験の成功により新たに規模を大きくし建設した蒸留装置である。KamLAND の液体シンチレータは dodecane、pseudocumene、PPO と 3 種類で構成されていて、この中で PPO は特に沸点が高く量も少ないので、蒸留塔 I で低沸点成分の dodecane と pseudocumene を蒸留し残った液体を蒸留塔 II で蒸留するように設計されている。蒸留塔 I と II の違いは、装置のサイズと蒸留塔 II では PPO の蒸留ができるように経路にリボンヒーターを巻き PPO の融点の 72 度以上を保てるようにしていることである。また冷却器の温度も自由に調節できるように温水器が取り付けられている。それぞれ基本的な性能に違いはなく、カラム内に詰めるスルザーパッキンもそれぞれ理論段数 20 段まで積むことができる。

図(4.9)にテストベンチの模式図を示す。蒸留塔 I では、還流比による分留効果の影響を確認するために塔上部に凝縮され下降する液体の流量を測定するための流量計がとりつけられている。また留出量の測定のためにも流量計がとりつけられていて、2つの受け器につながっている。受け器が2つあるのは、dodecane、pseudocumene と別々のタイミングで蒸留されるのでそれぞれ別々の受け器に送るためや、蒸留の初めのほうに留出する液体(初留)と蒸気温度が一定になったところで留出する液体(本留)をわけて送り、それぞれの分留効率を調べるためである。一般に、蒸留の初留と終わりのほうで後留は蒸気温度が一定でなく、組成が変動し、結果として副成分が多く含まれることが多い。また温度を測定するために、熱電対がそれぞれの塔の蒸留フラスコと留出液をとるところにつけられており、常に温度がモニタリングできるようにしてある。系を一定真空に保つための真空ポンプについては、小規模蒸留装置では系が一定圧力になるまで気体を排出したら真空ポンプは止まり、リークによって圧力があがったときにまた真空ポンプが動きだし設定した圧力になるまで気体を排出するという系であったが、このテストベンチでは装置の

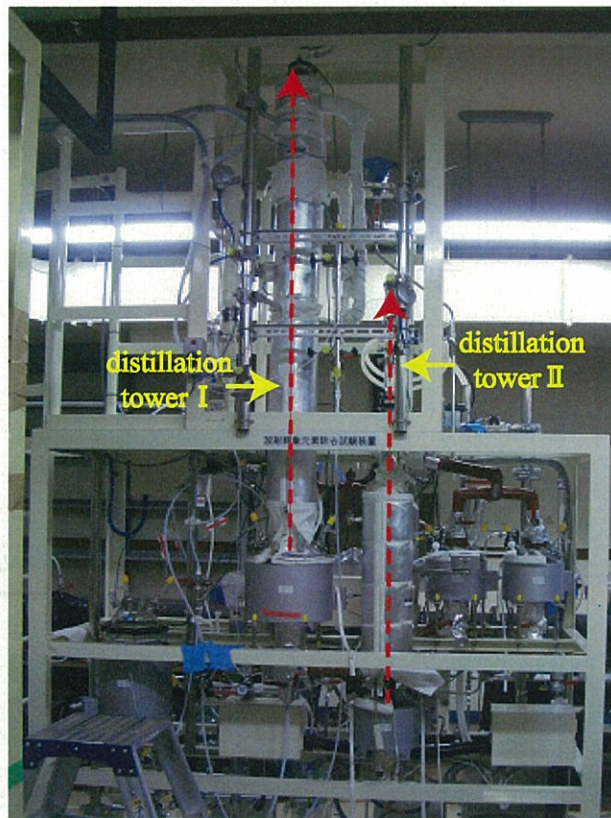


図 4.8: テストベンチ

サイズが大きくリークポイントも多いので、常に真空ポンプは動いた状態を保ち、気体をバッファータンクの外側より常時とりいれてリークによる気体とともに排出するという系になっている。外部の大気は酸素を含んでいるので、これを系内にとりこむと熱された液体シンチレータが酸化する。そのため、外部から気体を取り入れる入り口には窒素ポンプへの経路をつないで系には窒素しかはいらないようにしている。

5章で述べる Rn、Kr の除去、6章の K の除去に関しては主に第2塔を用い、6章で述べる Pb の除去に関しては第1塔を用いる。このテストベンチによって実験を行い、実際に KamLAND エリアに建設する3塔の蒸留塔のデザインを考える。

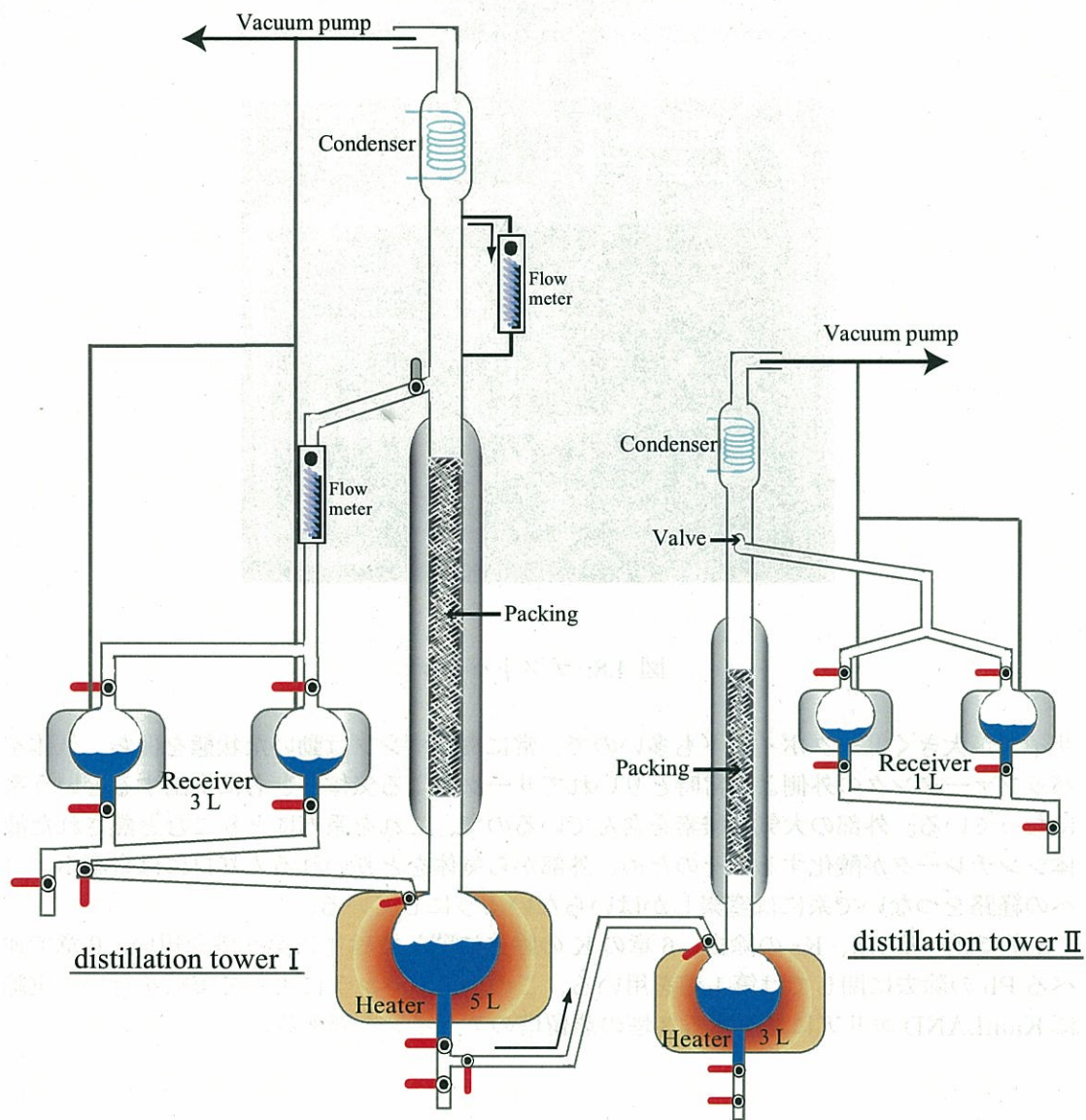


図 4.9: テストベンチの模式図

第5章 液体シンチレータからの放射性希ガス元素の除去

この章では、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測する上でもっとも大きなバックグラウンドの一つとなる ${}^{85}\text{Kr}$ と、22.3年という長い半減期を持つ放射性不純物 ${}^{210}\text{Pb}$ を生み出す ${}^{222}\text{Rn}$ の蒸留法による除去について述べる。希ガス元素は大気中にも存在するので、純化の際密閉されているバルーンから取り出して純化したバルーンに注ぐまでの循環の間に、配管内に残る大気やリークによって汚染される可能性がある。そのため、目標としている除去率は1回の循環の純化で達成する必要がある。

5.1 蒸留法による Kr の除去

この節では、 ${}^7\text{Be}$ ニュートリノを観測する上でもっとも大きなバックグラウンドとなる ${}^{85}\text{Kr}$ の蒸留法による除去について述べる。3章で述べたように必要とされている Kr の減少率は $10^{-5} \sim 10^{-6}$ 程度である。最初に Kr の性質と Kr 測定系について触れ、小規模蒸留装置、テストベンチのそれぞれの除去結果について示す。

5.1.1 Kr の性質

${}^{85}\text{Kr}$ は3章で述べたように、核燃料の再処理の際大気に放出される半減期が10.76年の放射性希ガス元素である。クリプトンはアルゴンなどと同類の不活性ガスであるので、濃縮されたり蓄積されることがなく、大気と混ざり希釈される。大気中には約1.4ppmのクリプトンが存在している。通常のクリプトンは大気から精製分離されていて、放電管の封入ガスとして使用されている。天然に存在するクリプトンには、 ${}^{78}\text{Kr}$ (0.35%)、 ${}^{80}\text{Kr}$ (2.27%)、 ${}^{82}\text{Kr}$ (11.56%)、 ${}^{83}\text{Kr}$ (11.55%)、 ${}^{84}\text{Kr}$ (56.90%)、 ${}^{86}\text{Kr}$ (17.37%)があり、これらは放射性元素ではない。Krの化学的な性質について表(5.1)に示す。

表(5.1)に示すように、クリプトンは非常に低い融点と沸点を持っており、通常の状態において気体であることがわかる。また、電子親和力が0であるので他の分子とほとんど反応することがなく単体で存在している。次に、液体シンチレータの成分のうち、dodecaneへのクリプトンの溶解度を表すグラフを図(5.1)に示す。その他にも参考として、benzene、octane、heptane、hexaneへの溶解度も示してある。この中でBenzeneは液体シンチレータの成分の中 pseudocumene に構造が近いので、溶解度もこれに近いものと考えられる。図より、大体常温(26度)では0.9volume/volumeと溶解度は比較的高くない。温度依存性も緩やかであり、高温にしてもそれほど溶解度は下がらないことがわかる。3章で述べたように現在のKamLANDにおける ${}^{85}\text{Kr}$ の量は $500\text{mBq}/\text{m}^3$ 程度であり、外部のクリプ

原子番号	36
原子量	83.80
原子半径 (Å)	2.01
融点 (°C)	-156.6
沸点 (°C)	-152.3
密度 (g/l)	3.739
イオン化エネルギー (eV)	13.999
電子親和力 (eV)	0

表 5.1: クリプトンの性質

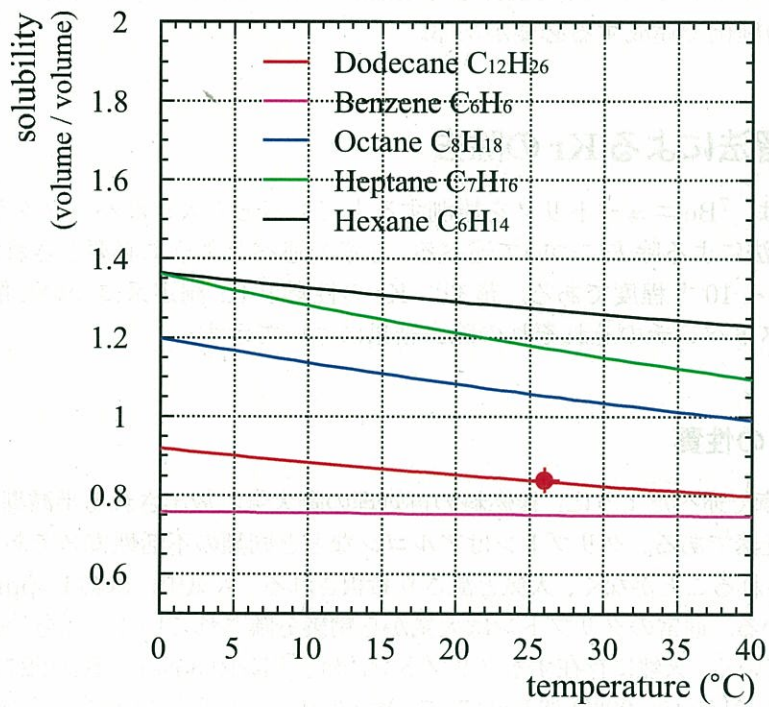


図 5.1: Kr の dodecane への溶解度 [6]

トン濃度が 1.1mBq/m^3 程度であることを考えると、初期の液体シンチレータの純化の際、多量の外気のクリプトンが液体シンチレータに溶け込んだことがわかる。液体シンチレータを再純化する場合は、現在溶け込んでいるクリプトンを除去するだけでなく、配管内に残る大気や配管の継ぎ目からのリークなどに十分に注意する必要がある。

5.1.2 Kr 測定系

実際に KamLAND においてバックグラウンドとなっているのは ^{85}Kr であるが、これを他のクリプトンと分離して選択的に用いるのは不可能であるので、実験では放射性元素ではないクリプトンを用いる。化学的性質は前節で述べたように ^{85}Kr もその他のクリプトンも変わることがないと考えられるので、除去効率を調べる実験においては問題ない。液体シンチレータに溶かしこんだクリプトン濃度を調べる装置として、PDD 搭載ガスクロマトグラフを用いる。

PDD 搭載ガスクロマトグラフの原理と装置

PDD 搭載ガスクロマトグラフの検出原理と装置について述べる。混合物の状態で存在している多数の微量有機化合物を分離して、個々の化合物の存在量を調べる装置を一般にガスクロマトグラフと呼び、各成分を分離するカラムと呼ばれる部分とそれを検出する検出器から構成される。大きな面積を有する固定相 (液体) と、これに接して流れる移動相 (気体) との間に分離すべき成分を分配させて分離を行う。移動相をキャリアーガスといい、試料物質は気化された状態で注入されキャリアーガスに運ばれてカラムにはいる。分離カラムを通過する間に試料物質はキャリアーガスから固定相への溶解と、固定相からキャリアーガス中への気化を繰り返す。気相中に存在する間、試料分子はキャリアーガスと同じ線速度で移動し、固定相に保持されている間は停止している。この試料分子が移動相、固定相に分配される割合はそれぞれの物質固有の分配係数で決まる。カラム出口には検出器が取り付けられていて、分離された物質がそれぞれの分配係数に基づいてある一定時間後にでてきてそれぞれ検出される。

カラムには、キャピラリーカラムと呼ばれる内径が $0.1\text{mm} \sim 0.5\text{mm}$ 程度、長さが $10\text{m} \sim 100\text{m}$ 程度でカラム内壁に固定相液体をコーティングしたカラムが用いられている。このキャピラリーカラムはキャリアーガスの透過性がよく長いカラムを使うことができるので、カラム効率が低い。

次に検出器について述べる。PDD¹ とはパルス放電光イオン化検出器のことであり、主にヘリウムへのパルス放電によって得られる光量子をエネルギー源とした検出器である。この PDD には HID モード² と PID モード³ とあり、測定したい物質ともとめる感度によって使いわける。まず、HID モードについて説明する。図 (5.2) は検出器の構造であるが、構造は HID モードも PID モードも同じで、そこへ流すキャリアーガスの違いによる。

HID モードではヘリウムを流し、PID モードではヘリウムにアルゴンかクリプトンかキセノンを混ぜた気体を流す。パルス放電光イオン化検出器は、ガスクロマトグラフに試料となる気体が挿入され、カラムを通過してでてきた試料成分にそのイオン化電圧より高いエネルギーを持つ光を照射しイオン化させ、イオン化によって生じた電子による電流増加をピークとして検出する。

次に HID モード、PID モードのエネルギー源の原理について図 (5.3) に示す。HID モードから説明すると、パルス放電エネルギーにより 2 量体となったヘリウム (He_2) は、解離

¹Pulsed Discharge Detector

²Helium Ionization Detector

³Photo Ionization Detector

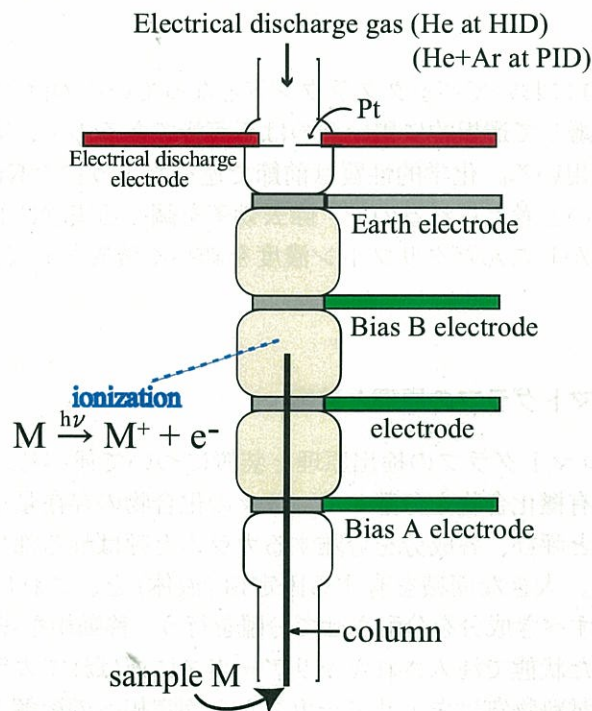


図 5.2: パルス放電光イオン化検出器の構造

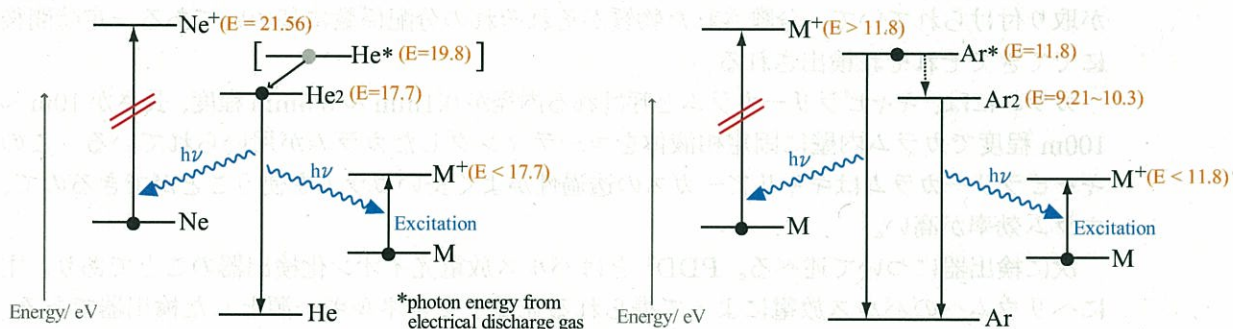


図 5.3: HID の原理 (左) と PID の原理 (右)

したヘリウム (He) へ失活し、この時に光量子 ($h\nu$) が放出される。この光量子がイオン化のエネルギー源となる。HID モードでは、光量子エネルギーの最高値が 17.7eV であり、イオン化ポテンシャルがこれよりも小さいものが検出される。ネオンは 21.56eV と高いため感度はほとんどない。

次に PID モードについて述べる。放電ガスをアルゴン、キセノン、またはクリプトンを数%混ぜたヘリウムすることにより、イオン化源は混合ガスの励起状態からの失活と 2 量体励起状態からの失活による光量子エネルギーになる。そしてパルス放電によって発生したこれらのエネルギーがカラムからの流出成分をイオン化する。図 (5.3) ではアルゴンの場合を示しているが、このように放電ガスの選択によって光量子エネルギーを変化させ

ることで選択的な検出が可能となる。

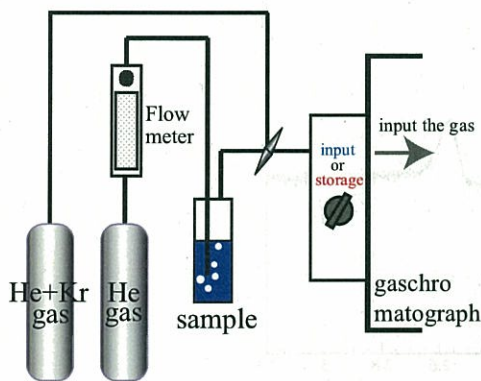


図 5.4: ガスクロマトグラフと測定するガスをガスクロマトグラフに送る系 (右の写真) と測定するガスを送る系の模式図 (左)

図 (5.4) にガスクロマトグラフ全体図を示す。測定するガスは、液体シンチレータまたはドデカン中にふくまれるクリプトンである。この装置では、サンプルにヘリウムガスを送り溶存クリプトンを押し出し、そのガスをガスクロマトグラフに送ることで、クリプトンを検出する。またクリプトン濃度の較正用に、クリプトン濃度のわかっている He+Kr の標準ガス (Kr 濃度:30.8ppm) もガスクロマトグラフに送れるようにセットしている。

図 (5.5) に PID モード (上図) と HID モード (下図) で測定した酸素、窒素、クリプトンの図を示す。HID モードでは、ピークの左から順に酸素、窒素、クリプトンが観測されているのがわかる。PID モードでは、キャリアーガスに He+Ar を使っていて Ar のイオン化ポテンシャルエネルギー 11.8eV より高い、酸素 (O_2 :12.1eV) と窒素 (N_2 :15.6eV) は検出されず、それぞれの領域にあたるどころがアンダーシュートしている。クリプトンのイオン化エネルギーは 10.6eV であるので検出されているのがわかる。

図 (5.5) を見てみると、両モードとも同じ 30.8ppm のクリプトンを測定しており HID モードのほうが下限値の感度が高いように見えるが、クリプトンの近い位置に窒素が検出されるので、窒素のピークが大きくなるとクリプトンのピークにまで重なりクリプトンの正確な量がわかりにくくなる。特に蒸留したサンプルを測定すると、サンプルが大量の窒素を含んでおり、HID モードで測定するとクリプトンが完全に窒素に隠れる。そのため、クリプトンの測定に関しては今後 PID モードを用いることにする。

Kr の濃度較正

実験を行う前に、ピークとして検出されたクリプトンの量が実際にはどの程度であるかを調べるために濃度較正を行う。方法は、図 (5.4) に示すようにクリプトン濃度のわかっている He+Kr という標準ガスを用いる。標準ガスのクリプトン濃度は 30.8ppm である。これを、ガスクロマトグラフで測定すると図 (5.6) の左図のように観測される。クリプトンのピークは、図 (5.5) でも示したように 2.5min あたりから立ち上がりをはじめ。時間

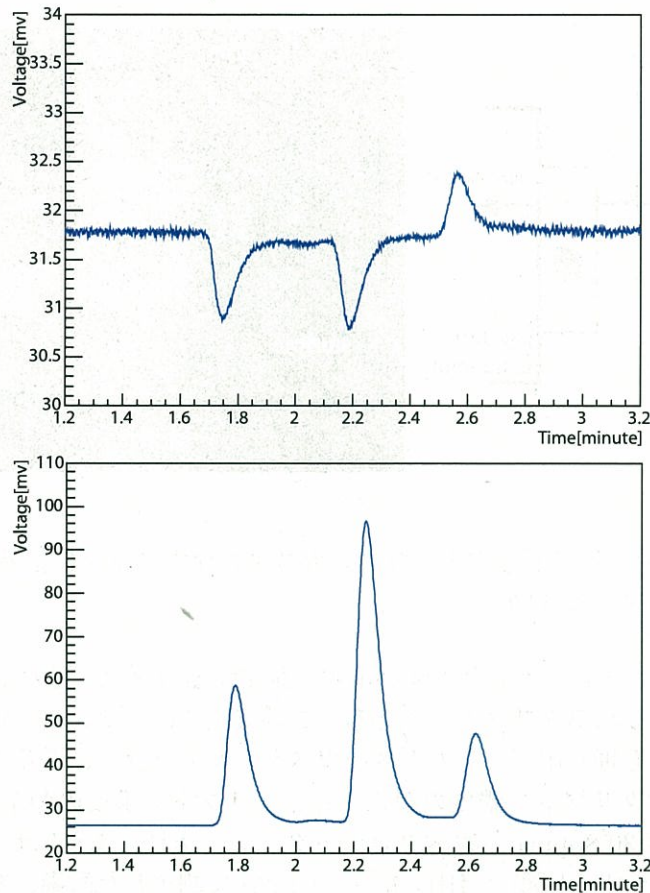


図 5.5: PID モード(上)と HID モード(下)で測定した酸素、窒素、クリプトン。上下どちらも 30.8ppm のクリプトンを測定したものである。酸素、窒素は微量に配管内に残留していたものが検出されている。

のずれはほとんどなく 2.5 ± 0.025 min 程度である。ピークの広がりにはクリプトン濃度に比例して大きくなる。濃度較正は、30.8ppm のクリプトンとバックグラウンド (0ppm) を用いて行う。図 (5.6) の右図はヘリウムのみをガスクロマトグラフに流して観測したもので、これがバックグラウンドレベルとなる。

バックグラウンドにおけるピークの見積もり方は、クリプトンのピークが 2.5min から立ち上がることがわかっており、かつバックグラウンド付近でのピーク幅が 0.1 ~ 0.2min 程度であるので、2.5min から 0.2min の幅でバックグラウンドレベルの面積を見積もる。

それぞれのピークの面積を 3 ~ 5 回程度測定し、それらの値を用いてフィッティングしたのが図 (5.7) である。2 点しかないので精度はあまりよくなく高いクリプトン濃度になると大きなずれが予想されるが、今回の実験目的は蒸留前後のクリプトン濃度の比較による除去率の見積もりで、高い精度を必要としないのでこれを用いる。濃度較正は、バックグラウンドレベルのふらつきのために実験期間が離れると再度行う必要がある。

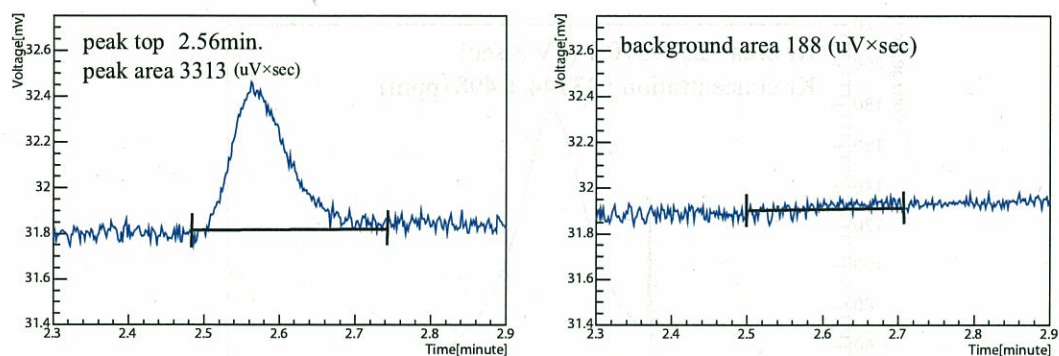


図 5.6: 標準ガス (Kr:30.8ppm) によるクリプトンのピーク (左) とバックグラウンド (右)

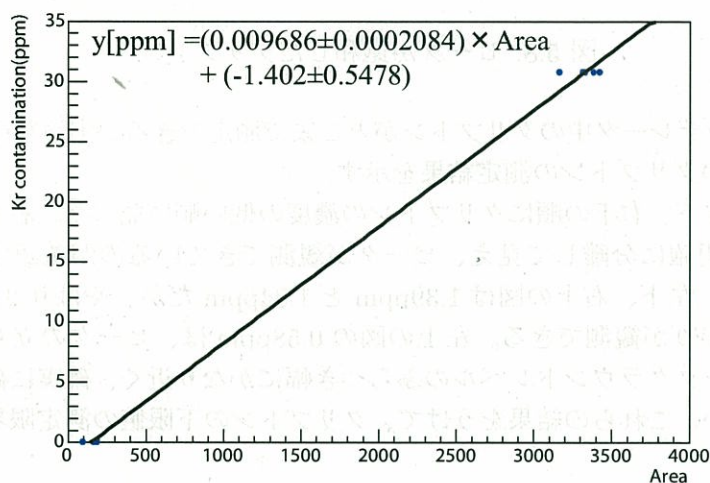


図 5.7: 標準ガス (Kr:30.8ppm) によるクリプトン濃度の較正

Kr の測定限界

まずクリプトン測定の上限值について述べる。液体シンチレータ中のクリプトンを測定するときに、図 (5.4) のように液体シンチレータに一定量のヘリウムガスを送り、溶存クリプトンを追い出しそれを測定する。その際、溶存クリプトン濃度が高い場合クリプトンのピークにカットオフがかかり正確なピークを測定できなくなる。

図 (5.8) の面積よりクリプトン濃度を図 (5.7) の濃度較正グラフを用いて算出すると 23144ppm であるが、実際はカットオフがかかっている分これより濃度は高いと予想される。ピークにカットオフがかかり始めるのは大体 14000ppm を越えた辺りで、これが上限値の測定限界である。

次に、下限値の測定限界について述べる。液体シンチレータにクリプトンを溶かしこみ、ヘリウムを液体シンチレータに送ってその気体をガスクロマトグラフで測定する操作を繰

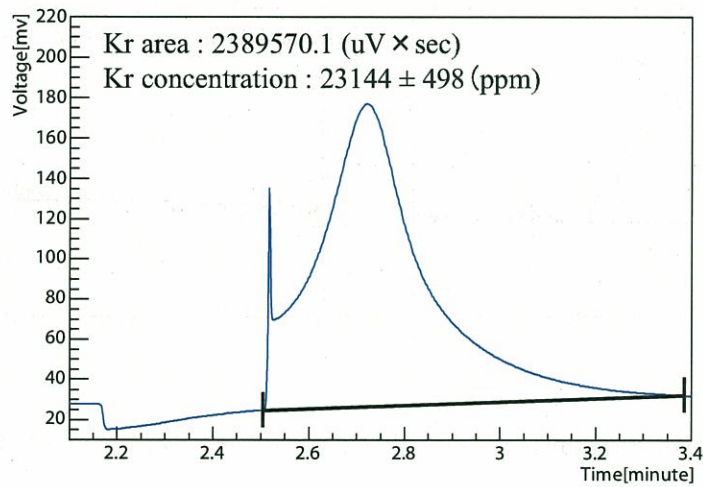


図 5.8: ピークが飽和したクリプトン

り返し、液体シンチレータ中のクリプトンがどこまで測定できるか実験を行った。図 (5.9) に測定限界付近のクリプトンの測定結果を示す。

左上、右上、左下、右下の順にクリプトンの濃度の低い順に並べた。右下の図はバックグラウンドとは明確に分離して見え、ピークが観測できているのが確認できる。これが 3.40ppm である。左下、右上の図は 1.39ppm と 1.84ppm だが、やはり 2.5min 辺りからピークの立ち上がりが観測できる。左上の図の 0.58ppm は、ピークの立ち上がりは観測できるもののバックグラウンドレベルのふらつき幅にかなり近く、確実に観測できているというのは難しい。これらの結果をうけて、クリプトンの下限値の測定限界を 1ppm と見積もった。

5.1.3 小規模蒸留装置における除去率

小規模蒸留装置を用いて液体シンチレータのうちの 80% を占めるドデカンにクリプトンを溶かし、蒸留前後のクリプトン濃度の変化を調べ除去率を見積もる。実験前に標準ガスを用いてクリプトンの濃度較正を行ったところ、 $y[\text{ppm}] = (0.008354 \pm 0.0001524) \times \text{Area} + (-0.5742 \pm 0.4047)$ となった。これを用いてクリプトン濃度を見積もる。

まず蒸留前のドデカン中のクリプトン濃度を測定する。ドデカンにヘリウムガスを送りこみクリプトンを追い出し、ガスクロマトグラフでヘリウムガス中のクリプトンを測定する。図 (5.4) の装置にサンプルをセットして、ヘリウムガスを一定量送るたびにその時のクリプトン濃度を測定する。サンプルの量は 80ml で、ヘリウムを 1 分間 80ml/min の流量で流してはクリプトン濃度を測定する操作を 8 回繰り返した。その結果を図 (5.10) に示す。

図からわかるように最初の 3 回の測定では、ドデカン中のクリプトン濃度が高すぎて、ピークが飽和し測定限界を越えており、正確にクリプトン濃度を測定することができない。そのため 4 回目以降の結果を図にプロットし、exponential でフィットすることによって 1

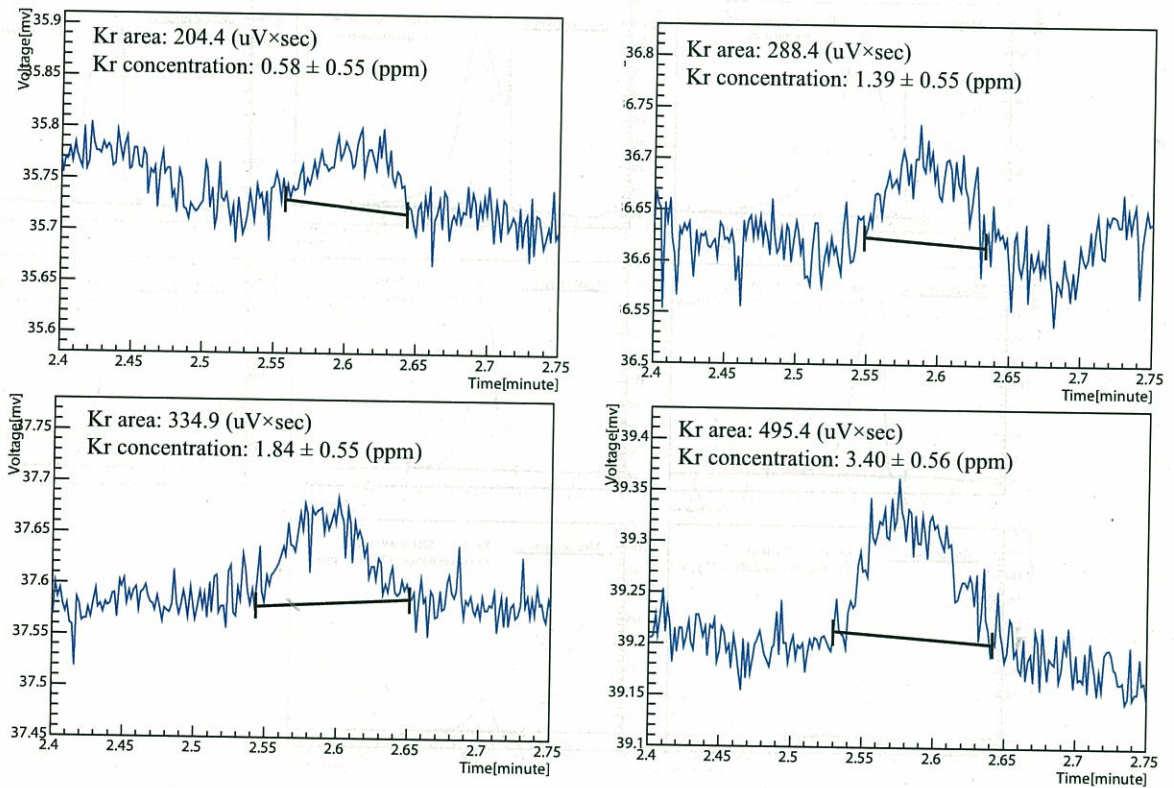


図 5.9: 測定限界付近のクリプトン。図中のクリプトン濃度はそれぞれのクリプトンのピーク面積から、図 (5.7) の濃度校正曲線を用いて計算してもとめている。

回目の時点でのクリプトン濃度を外挿し見積もる。その結果を図 (5.11) に示す。図 (5.11) より、1 回目の測定におけるクリプトンの濃度は、

$$\exp((11.39 \pm 0.03361) + (-0.5243 \pm 0.0054)) = 52400 \pm 1800 \text{ (ppm)}$$

と見積もった。

上記のようにクリプトン濃度を見積もった dodecane を小規模蒸留装置を用いて蒸留する。蒸留条件について以下の表に示す。

蒸留条件	
Sample	dodecane + Kr 150ml
Heating time	100 min
Pressure	100 hPa
Temperature	142 °C(蒸留フラスコ内)

表 5.2: 小規模蒸留装置における蒸留条件

Heating time は、ドデカンの沸点に達するまでのウォーミングアップの時間も含まれている。蒸留した量は 100ml で、そのうち 80ml を用いてガスクロマトグラフでクリプトン濃

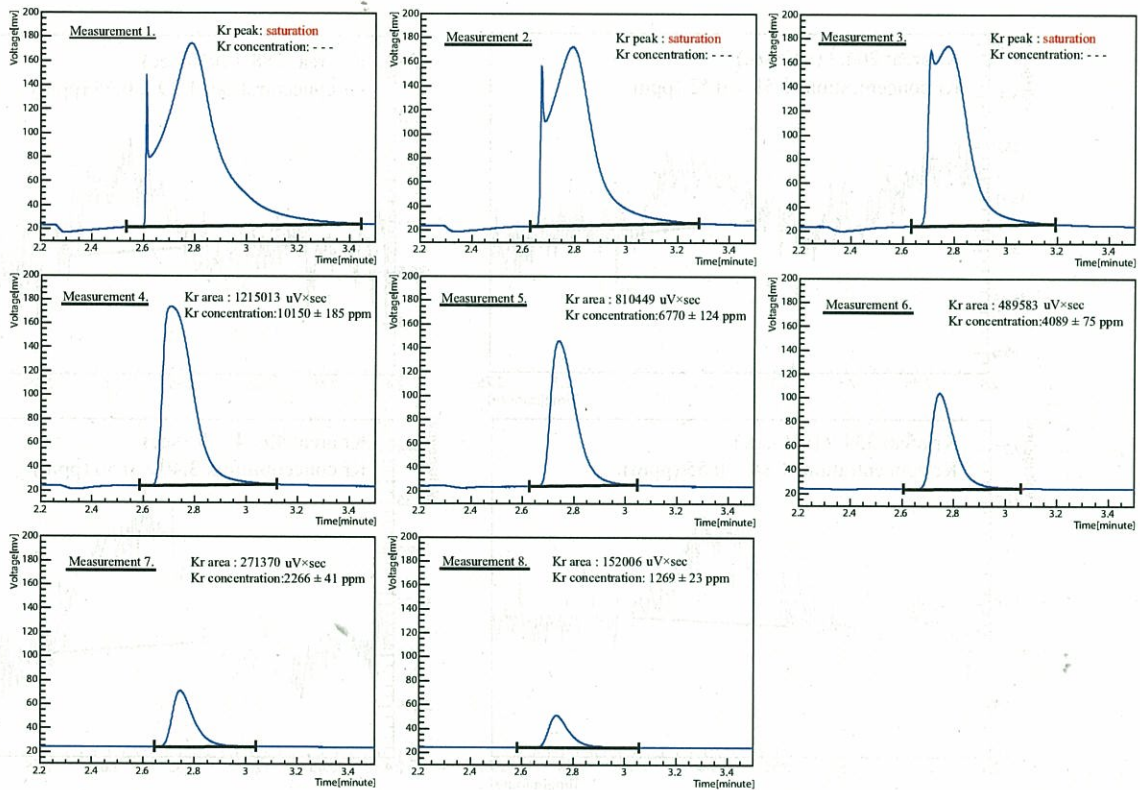


図 5.10: 蒸留前のドデカン中の溶存クリプトン

度を2回測定した。その結果を図(5.12)に示す。

図の中にある図は大きいスケールで見た図で、蒸留後ドデカンに溶け込んだ窒素が2.3minぐらいをピークにアンダーシュートしているのがわかる。窒素の量が多いためクリプトンの領域までアンダーシュートが続いているが、クリプトンの測定には問題ない。クリプトンが存在するのならば斜めのバックグラウンド上にピークがたつ。クリプトンは2.5minあたりから立ち上がりをはじめますが、図より立ち上がりの兆候がない。よって、蒸留後のドデカン中のクリプトン濃度は測定限界の1ppm以下であるといえる。

蒸留前が 52400 ± 1800 ppm で蒸留後が1ppm以下であるので小規模蒸留装置によるクリプトンの除去率は、

$$\text{Reduction rate} < \frac{1}{52400 \pm 1800} = (1.9 \pm 0.1) \times 10^{-5}$$

となる。

5.1.4 テストベンチにおける除去率

次にテストベンチを用いてクリプトンの除去率を確認する。今回はドデカンではなく実際のKamLANDで行う蒸留を想定して、混合物である液体シンチレータを用いることにする。液体シンチレータは現在KamLANDエリアに保管してある、バルーン内にいれられている液体シンチレータと同じ純化処理がなされたものを使用する。

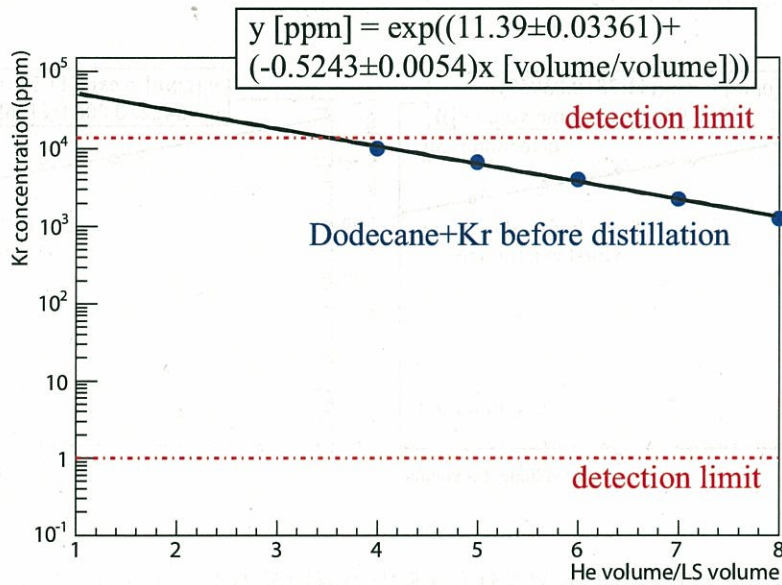


図 5.11: 小規模蒸留装置を用いて蒸留されたドデカン中の蒸留前のクリプトン濃度

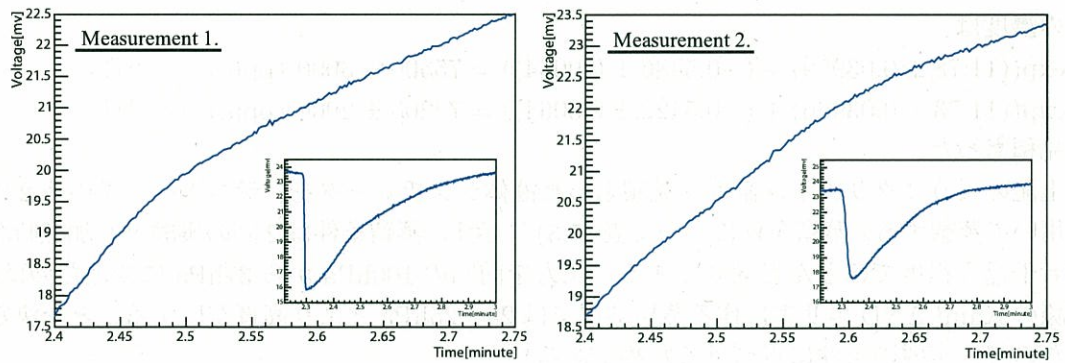


図 5.12: 小規模蒸留装置を用いて蒸留されたドデカン中のクリプトン (図中の図は、それぞれの図を拡大した図)

実験前に標準ガスを用いてクリプトンの濃度較正をおこなったが、図 (5.7) のように $y[\text{ppm}] = (0.009686 \pm 0.0002084) \times \text{Area} + (-1.402 \pm 0.5478)$ となった。これを用いてクリプトン濃度を見積もる。実験手順は小規模実験と同じで、まずサンプルである液体シンチレータにクリプトンガスを送り溶け込ませる。そして、液体シンチレータ中のクリプトン濃度をガスクロマトグラフを用いて測定する。測定する液体シンチレータの量は 80ml で、80ml/min の流量のヘリウムガスを 1 分間サンプルに送ってその気体を溜め、ガスクロマトグラフにその気体を input する。この操作を 8 回繰り返してクリプトン濃度の減衰をプロットしてフィットすることで測定 1 回目でのクリプトン濃度を見積もる。今回は、再現性の確認のため 2 回の実験をおこなった。図 (5.13) に 2 回の蒸留前の液体シンチレータ中

のクリプトン濃度の結果を示す。

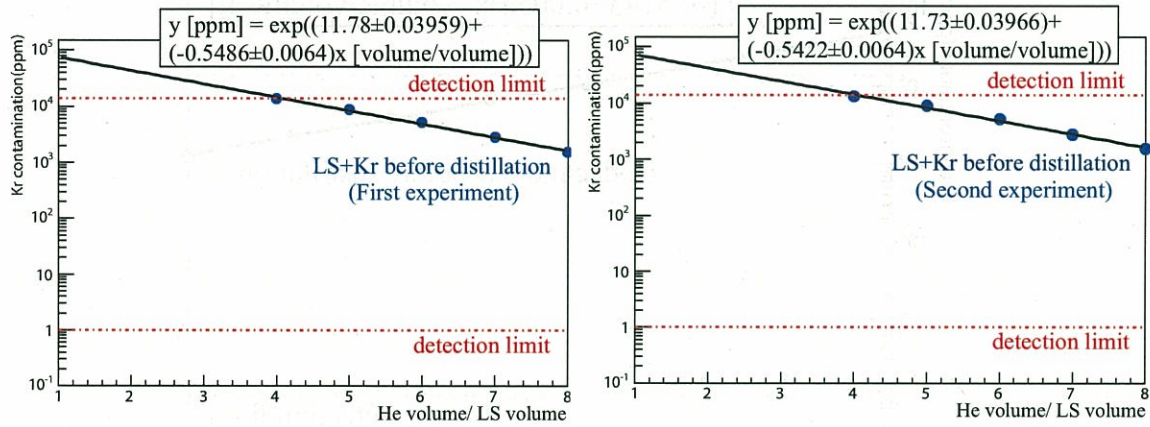


図 5.13: テストベンチを用いて蒸留された LS 中の蒸留前のクリプトン濃度 (左が 1 回目、右が 2 回目)

小規模実験のときと同じように、2 回の実験ともに最初の 3 回が測定限界を越えている。結果としてはほとんど同じ結果が得られ、図 (5.13) より、1 回目の測定におけるクリプトンの濃度は、

$$\exp((11.78 \pm 0.03959) + (-0.5486 \pm 0.0064)) = 75500 \pm 3000 \text{ (ppm)} \text{ (1 回目)}$$

$$\exp((11.73 \pm 0.03966) + (-0.5422 \pm 0.0064)) = 72200 \pm 2900 \text{ (ppm)} \text{ (2 回目)}$$

と見積もった。

上記のようにクリプトン濃度を見積もった液体シンチレータを、テストベンチの第 2 塔を用いて蒸留する。蒸留条件について表 (5.3) に示す。蒸留条件は 2 回の実験とも加熱時間が若干違う程度でほとんど同じである。圧力を前回の 100hPa から 37hPa に変えたのは、実際の KamLAND エリアに作る蒸留装置では 20~25hPa とより高真空にすることを決定したので、実機の条件に近づけるためである⁴。

蒸留条件	1 回目	2 回目
Sample	LS + Kr 500ml	LS + Kr 500ml
Heating time	98 min	90 min
Pressure	37 hPa	37 hPa
Theoretical plate	6	6

表 5.3: テストベンチにおける蒸留条件

また、蒸留中の蒸留フラスコと留出液をとりだすところの温度変化について参考として 1 回目の実験結果を図 (5.14) に示す。横軸が蒸留フラスコに熱を与えだした時間からの経過時間、縦軸がその時の温度である。赤線が蒸留フラスコ内の液体の温度、緑線が留

⁴実機で高真空にする理由は液体シンチレータが高温で熱されると酸素と反応して透過度や発行量が減少することがわかったので、より沸点をさげて蒸留するためである。

出液をとりだす付近の温度を示している。グラフからわかるようにまず蒸留フラスコの温度があがっていて、分留カラムへと熱された気体が昇っていく。そして15分程度たったところで、留出液の取り出し口付近まで熱された気体が達し、その付近の温度が急激にあがる。それからさらに10分~15分程度待つと分留カラム全体が液体でぬれ、全還流状態になり分留管内が安定状態となる。分留管内が安定状態になったところで、留出液の取り出し口を開き、蒸留を開始する。この時の温度は、図(4.4)や表(4.2)で示したように pseudocumene の 37hPa における沸点に近い。つまり、分留カラムで液体シンチレータが分離され pseudocumene のみが蒸留塔の上部にまで昇ってきていることがわかる。そして pseudocumene がほぼ蒸留されると今度は dodecane の沸点まで温度が自動的にあがっていく。dodecane の沸点に到達するまでの間はこの両方の混合物が蒸留されていると考えられる。

今回は、クリプトンの除去率をみるための実験なので、特に液体シンチレータの比率の変化は気にせずに蒸留をおこなった。蒸留物を受ける受け器は2器あるが、1器のみを用いている。ある一定量蒸留されたところで蒸留を終え、蒸留フラスコの Heater を止める。

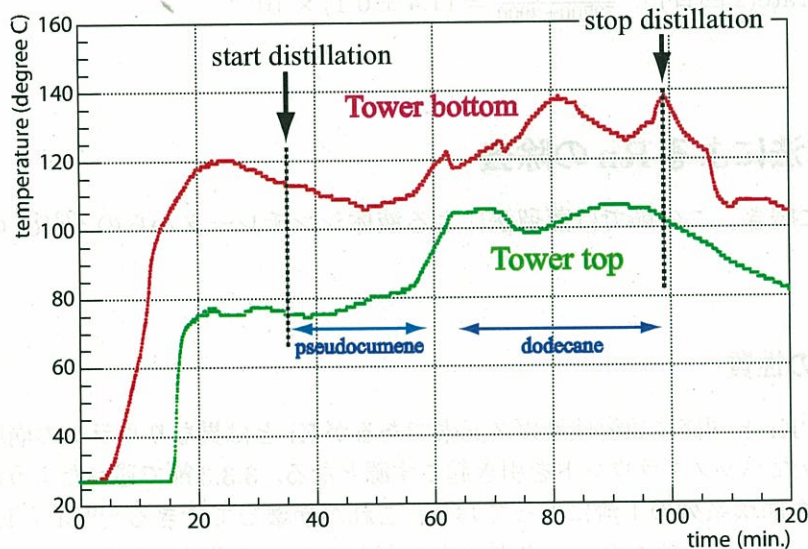


図 5.14: 蒸留中 (1 回目) の温度の時間変化

蒸留後蒸留物をガスクロマトグラフを用いて測定した結果、PPO は検出されなかった。蒸留量は、1 回目が 400ml、2 回目は 370ml である。1 回目の蒸留された液体シンチレータの混合比 (dodecane : pseudocumene) は 83:37 で 2 回目の混合比は 68:32 である。これらのサンプルをそれぞれガスクロマトグラフを用いてクリプトン濃度を測定した。その結果を図 (5.15) に示す。

1 回目も 2 回目もクリプトンが検出される 2.5min 付近にピークの立ち上がりはみられない。よって、両方ともクリプトン濃度は測定限界の 1ppm 以下であることがわかった。

蒸留前が 75500 ± 3000 (ppm) (1 回目)、 72200 ± 2900 (ppm) (2 回目) で蒸留後がどちらも 1ppm 以下であるのでテストベンチによるクリプトンの除去率は、

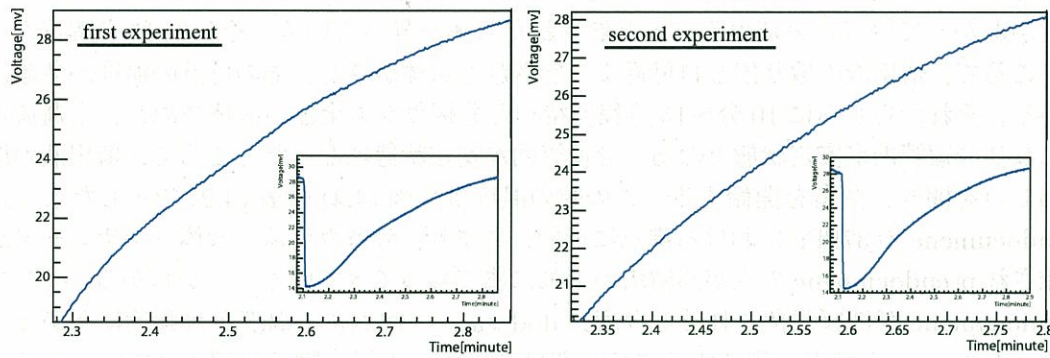


図 5.15: テストベンチを用いて蒸留された LS 中のクリプトン (図中の図は、それぞれの図を拡大した図)。左が 1 回目の実験結果、右が 2 回目の実験結果。

$$\text{Reduction rate(1 回目)} < \frac{1}{75500 \pm 3000} = (1.3 \pm 0.1) \times 10^{-5}$$

$$\text{Reduction rate(2 回目)} < \frac{1}{72200 \pm 2900} = (1.4 \pm 0.1) \times 10^{-5}$$

となる。

5.2 蒸留法による Rn の除去

Kr の除去に続き、この節では蒸留法による液体シンチレータからの ^{222}Rn の除去について述べる。

5.2.1 Rn の性質

^{222}Rn は、 ^{85}Kr と同様に放射性希ガス元素であるが Kr とは異なりウランの崩壊系列に属しており、様々なバックグラウンドを引き起こす源となる。3.3.3 節で述べたように、半減期の長い ^{210}Pb を崩壊系列の下流にもっており、これが崩壊してできる ^{210}Bi が KamLAND において ^{85}Kr と並んで最大のバックグラウンドとなる。まずは、ラドンについて化学的な性質を表 (5.4) に示す。

表からわかるように、希ガス元素の特徴としてイオン化エネルギーが高く電子親和力が 0 であることから、非常に単体性が強く化学的に安定であることがわかる。沸点と融点はクリプトンに比べて比較的高いが、常温と比べると明らかに低いため常に気体の状態である。クリプトンと比べると原子量が多く重いということもあり、希ガス元素の中ではもっとも液体シンチレータから除去することが困難であることが予想される。

また、ラドンは有機溶媒に非常に溶けやすい性質をもっており、水へのラドンの溶解度と有機溶媒へのラドンの溶解度を比べると 50 倍程度にもなる。ラドンの液体シンチレータへの温度と溶解度の関係について図 (5.16) に表す。

図では、溶媒として pseudocumene、toluene、benzene、hexane を示している。hexane は構造的に dodecane と似ているので、dodecane へのラドンの溶解度も同程度と予想される。図より hexane も pseudocumene も、常温 (26 度) 付近では 12(volume/volume) とクリ

原子番号	86
原子量	222
原子半径 (Å)	2.4
融点 (°C)	-71
沸点 (°C)	-61.9
密度 (g/l)	9.96
イオン化エネルギー (eV)	10.748
電子親和力 (eV)	0

表 5.4: ラドンの性質

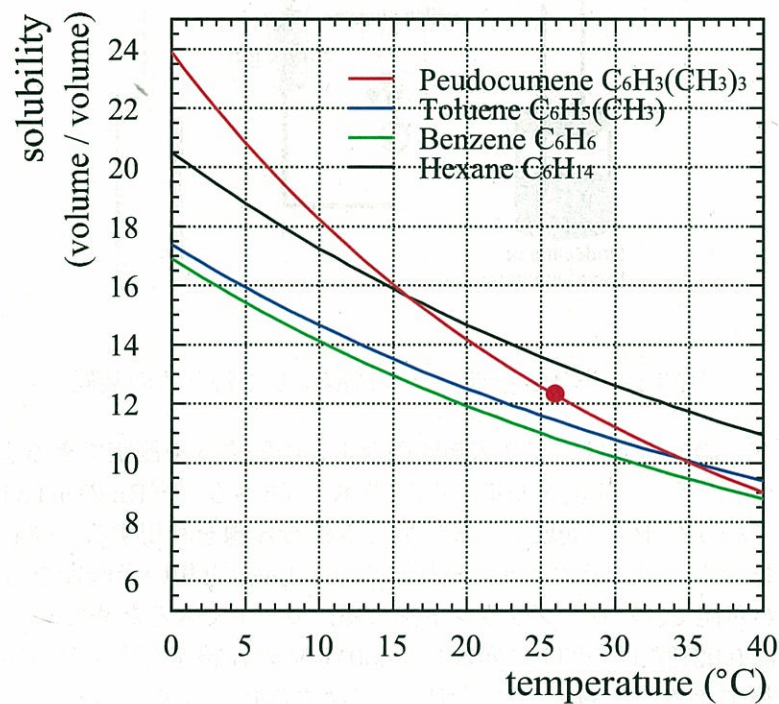


図 5.16: Rn の pseudocumene への溶解度 [6],[7]

プトンと比べても相当高い溶解度があり、除去を困難とさせている。外気に 40Bq/m^3 のラドンが存在しているところに、液体シンチレータを外気に触れさせ飽和させると 480Bq/m^3 ものラドンが含まれることになる。液体シンチレータを再純化するには出来るだけ外気に触れさせないようにするため、配管の継ぎ目にシールし、配管内を窒素で充満させ外気を追い出すなどの処置が必要となる。

5.2.2 Rn 測定系

実験の前段階として、 ^{222}Rn の液体シンチレータにおける activity を高めるために高濃度のラドンガスを液体シンチレータに溶かしこむ必要がある。 ^{222}Rn を液体シンチレータやその構成物に溶かしこむ装置を図 (5.17) に示す。 ^{222}Rn の線源として半減期 1600 年の ^{226}Ra を用いている。蒸留する前にサンプルに図 (5.17) のようにラドンガスを送りこみサ

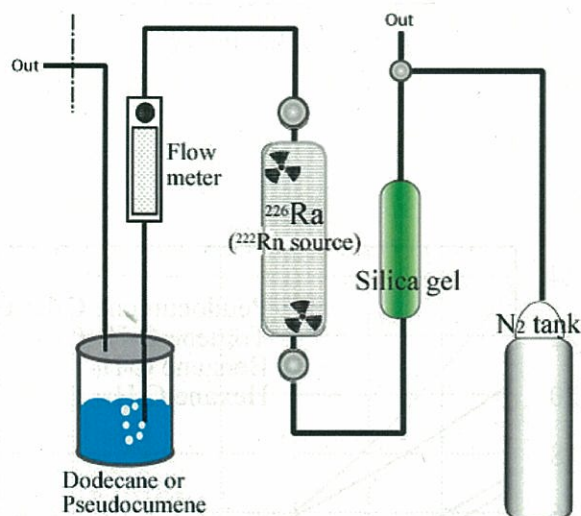


図 5.17: ^{222}Rn をサンプルに溶かしこむための装置

ンプル中のラドン濃度をあげ、より広範囲のラドンの除去率を測定できるようにする。

次にサンプル中のラドン濃度を測定する系について述べる。 ^{222}Rn の activity を測定するために、娘核である ^{214}Po が崩壊した後に放出される α 線を利用する。図 (5.18) に ^{222}Rn からの崩壊図を示す。図に示すように ^{214}Po は $164.3\mu\text{sec}$ と短い半減期をもっているため、遅延同時計測が可能で、バックグラウンドを大幅にカットできるためである。また、 ^{214}Bi が崩壊する時に 0.02% だけ ^{210}Tl に崩壊し 5.450MeV の α 線をだすが分岐比が小さいので実験的には無視できる。このように ^{214}Po が崩壊する時の α 線の数をカウントすることで、ラドンの activity を測定する。図 (5.19) に、 ^{214}Po からの α 線を捕らえるための回路を示す。まず、測定するサンプルを図の左上のように 2inch の PMT の上にセットする。この時、発行量をあげるためオプティカルグリースを用いている。Sample の周りは遮光し、かつバックグラウンドをさげるため 7cm 程度の鉛ブロックで覆っている。回路は、遅延同時計測を用いており、図の ADC0 で先発信号 (prompt event) を ADC1 で後発信号 (delayed event) を測定するように組んである。delayed event は、prompt event より遅れて 1msec の間にはいつてきた信号を捕らえられるようにゲートを調整してあり、 ^{214}Po の半減期が $164\mu\text{sec}$ なので、1msec でゲート幅は充分である。Scaler0 は一般に TDC の代わりとなるように組んだ回路⁵ であり、ADC0 と ADC1 の間の時間を測定できるように組ん

⁵一般の TDC は $1\mu\text{sec}$ 程度までしか測定できない。

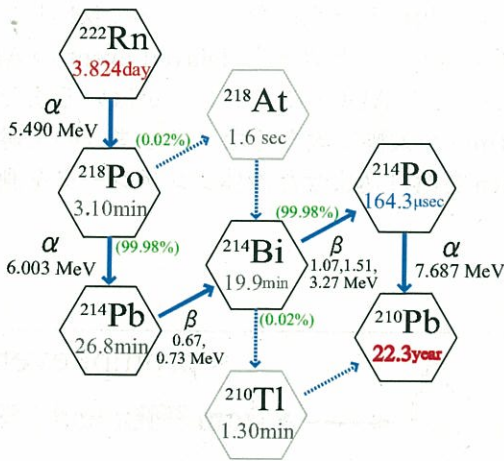


図 5.18: ^{222}Rn から ^{210}Pb までの崩壊図

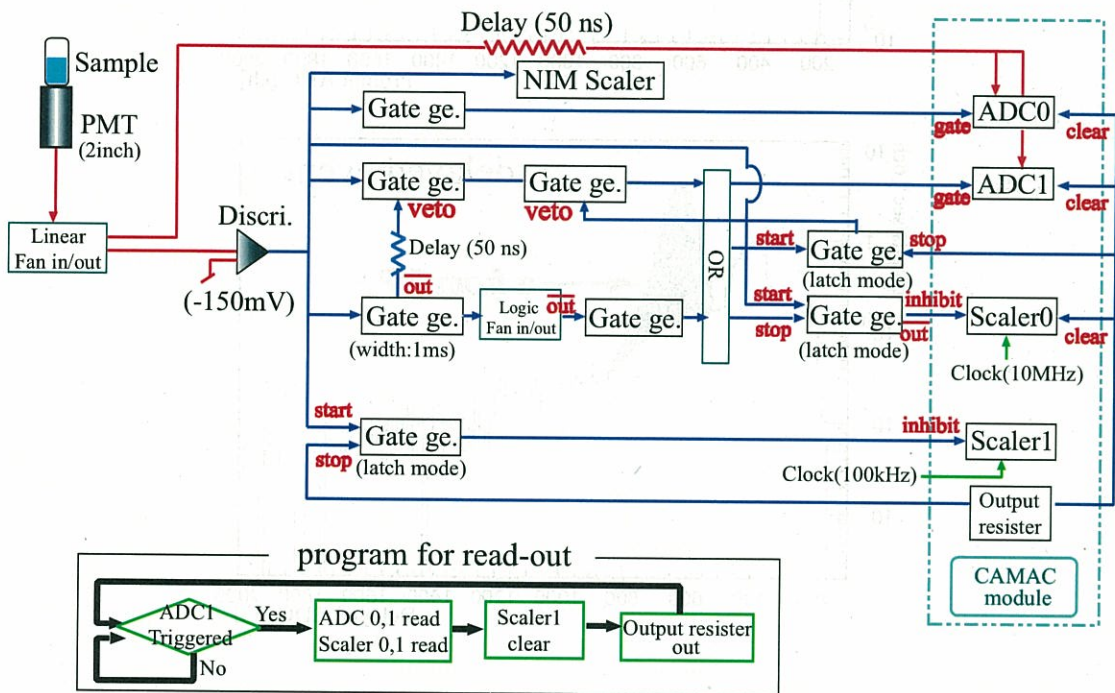


図 5.19: ^{222}Rn の Activity を計測するため Bi-Po の遅延同時計測を用いた回路。

であり、これによって先発信号から 1msec の間にはいったイベントの時間分布が確認できる。最後に Scaler1 は、回路がデータを取り出した測定可能状態になるまでの不感時間 (dead time) を測定するものである。イベントレートが高くなってくると dead time が大き

なくなってくるのでこの結果を用いると正確なイベントを収集している時間を見積もることができる。また、プログラム上でトリガーを delayed event の ADC1 でかけており、これは ADC0 でトリガーをかけると ADC1 にイベントがはいるまで 1 イベントにつき 1msec 待つ必要があり、dead time が大幅に大きくなってしまいうのを避けるためである。この回路を用いて、実際に ^{222}Rn を溶け込ませた液体シンチレータを測定した結果を図 (5.20) に示す。

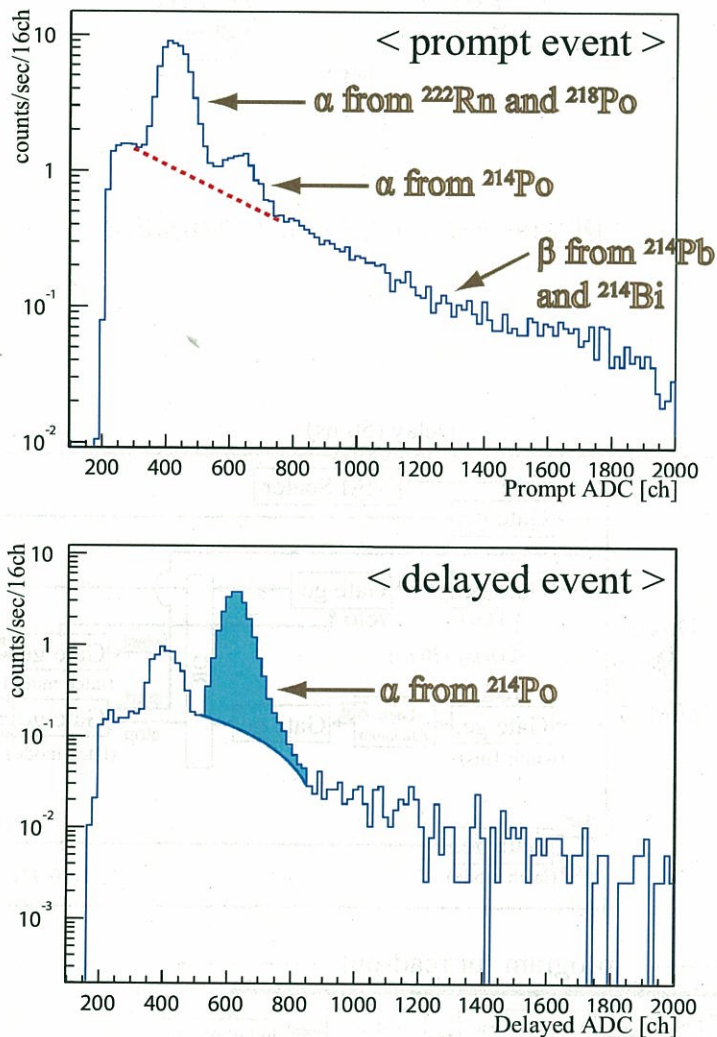


図 5.20: prompt event(図上) と delayed event(図下)。それぞれ 400ch あたりに見えるピークが ^{222}Rn と ^{218}Po からでる α 線 (Rn が 5.490MeV で Po が 6.003MeV) で、エネルギーが近いために重なって一つのピークに見える。650ch あたりに見えるのが ^{214}Po からでる α 線 (7.687MeV)。全体的に大きくテールをひいているのが、 ^{214}Pb と ^{214}Bi からでる β 線 (Pb が 0.67,0.73MeV で Bi が 1.07,1.51,3.27MeV)。

これらの結果と prompt event と delayed event の間の時間差 (ΔT) を用い、適当なカッ

ト条件を決めて ^{214}Po からの α 線のイベントレートを見積もる。図 (5.20) では、 $512 < \text{delayed event} < 848\text{ch}$ 、 $1 < \Delta T < 990 \mu\text{sec}$ をカット条件とし、さらに、 $512 < \text{delayed event} < 848\text{ch}$ の範囲で簡単に台形近似することによって ^{214}Po からの α 線の面積を計算する⁶。図の青く塗りつぶしたところがそれに対応しており、イベント数が 8253.8 events で有効測定時間 (Live time) が 382.018 sec であるので、イベントレートは $8253.8/382.018 = 21.61\text{cps}$ となる。

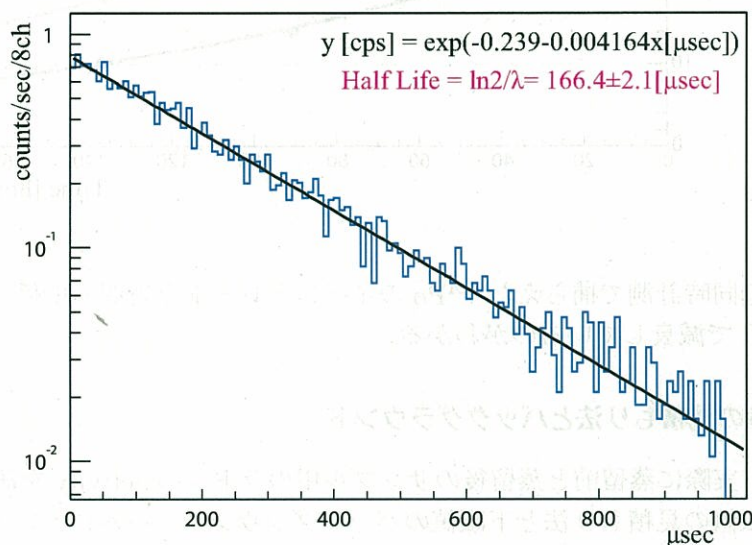


図 5.21: prompt event と delayed event の間の時間差。ゲート幅より $0 \sim 1000 \mu\text{sec}$ までを測定できるようにしている。exponential をフィッティングして壊変定数 λ をだし、半減期を計算する。

次に先ほどのカット条件を加えてイベントセレクションをした後の ΔT の時間分布を図 (5.21) に示す。イベントは ^{214}Po からの α 線が支配的であると予測されるので、図 (5.21) に exponential をフィッティングして壊変定数をもとめ半減期を計算すると、 $166.4 \pm 2.1 \mu\text{sec}$ であった。 ^{214}Po は半減期が $164.3 \mu\text{sec}$ なので、よい精度でイベントが抽出できているのがわかる。

また、図 (5.20) のようにとらえた delayed event の ^{214}Po が崩壊する様子を 2 サンプル使用して時間をおいて何回か測定し、プロットした。その結果について、図 (5.22) に示す。それぞれの測定点には、親核である ^{222}Rn の半減期 3.824 日 (91.776 時間) で exponential をフィッティングしている。図より、2 サンプルとも ^{214}Po のレートは半減期 3.824 日で減衰しているのがわかる。

⁶delayed event について、ガウシアンと一次式でフィッティングをしても結果にほとんど違いが生じないので台形近似を用いている。

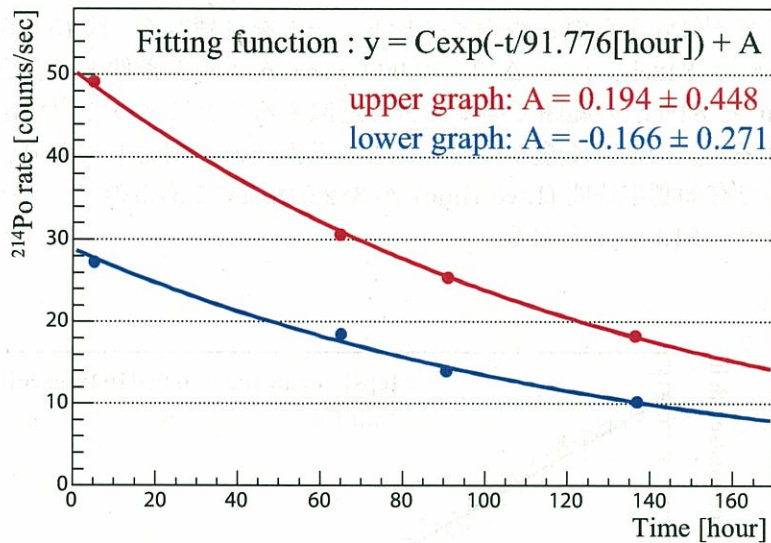


図 5.22: 遅延同時計測で捕らえた ^{214}Po のイベントレートと時間の関係。半減期 3.824 日 (91.776 時間) で減衰しているのがわかる。

Rn の上限値の見積もり法とバックグラウンド

ここでは、実際に蒸留前と蒸留後のサンプル中のラドンの activity を測定するときに関係する、上限値の見積もり法と下限値のバックグラウンドレベルについて述べる。

まずは、下限値について述べる。Rn の性質のところでも説明したように空気中には $40\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度の Rn が存在しており⁷、かつ非常に液体シンチレータへの溶解度が高い。Kr の場合は、空気中に放置した液体シンチレータではガスクロマトグラフでは溶存 Kr 濃度は測定できなかったが、Rn の場合は空気中に放置した液体シンチレータ中の溶存 Rn 濃度は図 (5.19) を用いて測定できるレベルにある可能性が高い。そのため、普段実験に用いている液体シンチレータを積極的に振って空気と混ぜあわせたものと、そのまま取り出したもの (取り出す過程やその前の段階で空気に触れているので空気中の Rn はある程度溶け込んでいる) と 2 サンプル測定した。その結果の delayed event を図 (5.23) に示す。

図に表すように、積極的に混ぜ合わせたほうが ^{214}Po からの α 線のイベントレートが 0.017cps で普通に取出して測定したほうが 0.010cps となっている。これより、バックグラウンドレベルは $0.01\text{cps} \sim 0.02\text{cps}$ 程度と予測され、これが下限値の測定限界となる。

次に測定に関する上限値について述べる。回路からわかるように、ゲート幅が 1msec なので single のイベントレートが 1000cps を越えると、平均すると 1msec に 1 回はイベントが来ることになり delayed event に大量の偶発イベントがはいる効率が悪くなるので 1000cps 以上を測定することはできない。そのため、実験では余裕をもって single のイベントレートが $300 \sim 400\text{cps}$ あたりを ^{214}Po からの α 線の測定に関する上限値として決める。single のイベントレートが 350cps だと大体、 ^{214}Po からの α 線のイベントレートが 50cps 程度になり下限値が 0.02cps 程度なので、 10^{-3} 程度しか除去率が測定できないこと

⁷地域差もあり、外気だと $10\text{Bq}/\text{m}^3 \sim 80\text{Bq}/\text{m}^3$ と幅がある。密閉性のよい室内だと Rn 濃度が高くなりやすい。

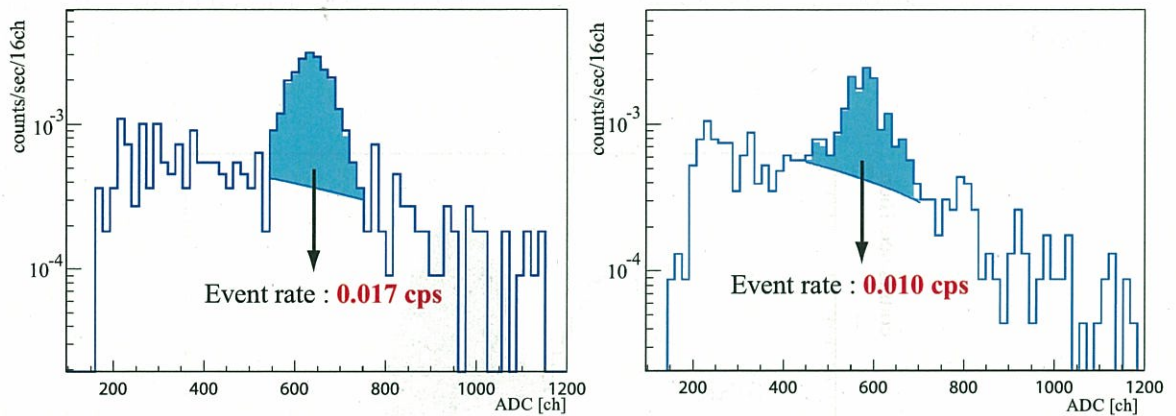


図 5.23: 積極的に液体シンチレータと空気を混ぜ合わせて測定した ^{214}Po からの α 線 (左) と普通に取り出して測定した ^{214}Po からの α 線 (右)。

になる。そのため測定できる上限値をあげるために、強い activity をもったサンプルを薄めて single で 400cps 以下にして測定するという手法をとることにする。薄める前後の Rn の activity の変化の見積もりについては、single のイベントレートの比率を用いる。イベントレートの測定には、図 (5.19) にある NIM の Scaler を用いてイベントレートを測定する。この NIM の Scaler は 80×10^6 cps まで測定することができ、取りこぼしが無いので薄めた比率を正確に見積もることができる。

薄めて測定する時の実験手順は、以下のようになる。

- (1) 液体シンチレータに図 (5.17) の装置を用いて ^{222}Rn を溶かしこみ、放射平衡になるまで 3 ~ 4 時間待つ⁸。
- (2) ^{222}Rn を溶かしこんだ液体シンチレータを図 (5.19) の回路を用いて、NIMscaler で single のイベントレートを測定する。
- (3) 次に ^{222}Rn を溶かしこんだ液体シンチレータを、何も溶かしこんでいない液体シンチレータで先ほど測定したイベントレートから薄めた後が 400cps 以下になるように薄める。(以下に表す例では 300 倍に薄めている。)
- (4) 薄めた後、また放射平衡になるまで 3 ~ 4 時間程度待ち、図 (5.19) の回路を用いて NIMscaler で single のイベントレートを測定し、また CAMACmodule で delayed event 等を測定する。
- (5) 薄める前と後の NIMscaler で測定した single のイベントレートを比較して、薄めた比率を見積もる。
- (6) delayed event で測定した ^{214}Po からの α 線のイベントレートに、薄めた比率をかけて薄める前のイベントレートを見積もる。

⁸放射平衡について詳しくは巻末の付録 C に記す。

例として、300 倍に薄めた液体シンチレータを測定したときの delayed event を図 (5.24) に示す。

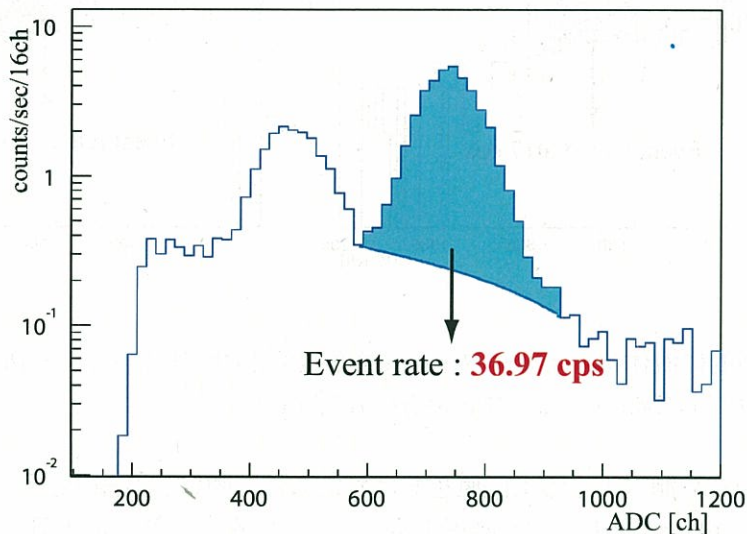


図 5.24: ラドンを溶かしこんだ液体シンチレータを 300 倍に薄めたときの ^{214}Po の activity

この時の、薄める前と薄めた後の NIMscaler で測定した single のイベントレートとそれから計算した薄めた比率、そしてその比率から計算された薄める前の ^{214}Po のイベントレートを表 (5.5) に示す。

Sample	single rate	dilution rate	Event rate of α -ray from ^{214}Po
Before dilution	68750 ± 26 cps	1	12050 ± 160 cps
After dilution	211.0 ± 1.5 cps	$1/(325.9 \pm 2.2)$	36.97 ± 0.41 cps

表 5.5: 薄める前後の single rate とそこからもとめた dilution rate と ^{214}Po からの α 線の Event rate。single rate はそれぞれ 100 秒測定している。薄めた後の ^{214}Po 測定における live time は 218.3 秒。

表 (5.5) からわかるように、300 倍に薄めているが、薄めた比率は 325.9 ± 2.2 となっており若干薄めた比率が高くなっている。これは薄める比率が大きくなってくると (逆に言うと薄める前の Rn 濃度が高いと)、systematic error が大きくなっていくということと薄める操作中に、液体からラドンが抜け出ているという可能性が考えられる。前者の場合は、薄める前の α 線のレートを見積もる時に single rate の比較を用いているので問題はない。後者の場合、蒸留する時にも液体シンチレータを蒸留装置に注ぎ込むという操作があり、これによってラドンがある程度抜け出るということになるので、蒸留前の Rn 濃度に関して測定されている値は信頼に足るものだと考えられる。

図 (5.24) より、 ^{214}Po からの α 線のイベントレートは 36.97cps であり、薄めた比率が

325.9±2.2なので、薄める前のイベントレートは、 $(36.97±0.41) × (325.9±2.2) = 12050±160\text{cps}$ となる。先ほど述べたようにバックグラウンドレベルが0.02cps程度なので、除去率としては 10^{-6} 程度まで測定できることになり充分であるといえる。

5.2.3 小規模蒸留装置における除去率

クリプトンの時と同様にまず、小規模蒸留装置を用いて液体シンチレータからのラドンの除去率を測定する。簡単のため、サンプルはdodecaneを用い表(5.6)のような蒸留条件で2度実験を行った。サンプルはdodecaneなので、図(5.19)の回路を用いて測定する時はpseudocumeneとPPOをたして測定する必要がある。測定する際はKamLANDの液体シンチレータの組成比に従って、dodecaneが80mlにpseudocumene 20mlとPPO 1.5g/lをたすことにする。測定するサンプルはそれぞれ同様の比率でpseudocumeneとPPOをたすので、最終的に見積もられる蒸留前後の除去率への影響はほとんどないものと考えられる。注意点としては、pseudocumeneとPPOをたした時に元の平衡状態が崩れるので、放射平衡になるまで3～4時間待ってから測定しなければならないことである。

蒸留条件	1回目	2回目
Sample	dodecane + Rn 150ml	dodecane + Rn 200ml
Heating time	120 min	120 min
Pressure	100 hPa	100 hPa

表 5.6: 小規模蒸留装置における蒸留条件

実験は2度おこなっており、どちらも加熱時間は120分で100ml程度蒸留をしている。蒸留後、蒸留された100mlのうち80mlのdodecaneを測定用として用いる。2度の実験は蒸留条件はほぼ同じであるが違いとしては、2回目の実験では初期の蒸留フラスコに入れる量を200mlにして、蒸留後蒸留フラスコ内に100ml程度残しそれを測定できるようにした点である。蒸留フラスコ内に残ったdodecaneのRnのactivityも測定することによって、蒸留されたものと違いがあるのかを確認する。以下、ここでは2回目の実験結果を図(5.25)と図(5.26)に示す。図(5.25)は、蒸留前のRnを溶かし込んだdodecaneを250倍に薄め、pseudocumeneとPPOをたして測定したものである。

図より、 ^{214}Po のactivityは49.89cpsと得られ、これに事前に計っておいた薄める前の液体のsingle rateとこのサンプルのsingle rateの比 $(286.4±1.3)^9$ をかけることによって、蒸留前のイベントレートが $14290±180\text{ cps}$ と見積もられた。また、図(5.26)に蒸留後のサンプルの ^{214}Po のactivityと、蒸留されずに蒸留フラスコに残ったサンプルの ^{214}Po のactivityを示す。蒸留後のサンプルのイベントレートが0.419cpsで、蒸留フラスコの残留液のイベントレートは0.609cpsであった。これらの結果から蒸留したサンプルのRnの除去率は、 $(0.419±0.008)/(14290±180) = (2.9±0.1) × 10^{-5}$ で、残留液のRnの除去率は、 $(0.609±0.010)/(14290±180) = (4.3±0.1) × 10^{-5}$ となった。

表(5.7)に1回目の実験結果もあわせて、蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと除去率

⁹繰り返しになるが、実験的には250倍に薄めたが実際は $286.4±1.3$ 倍に薄まっていることになる。

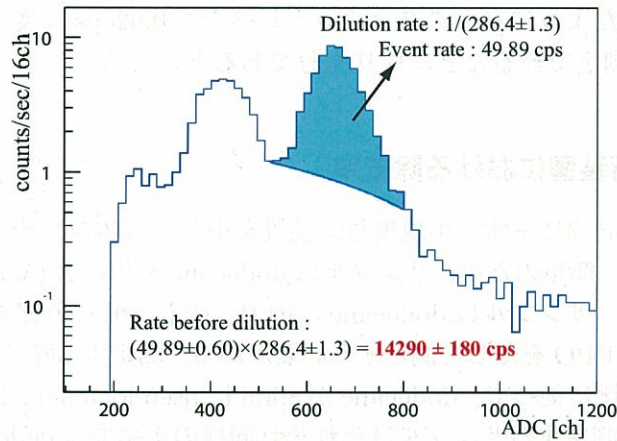


図 5.25: ラドンを溶かしこんだ dodecane を 250 倍に薄めて pseudocumene と PPO をたし液体シンチレータとしたときの ^{214}Po の activity。2 回目の実験の蒸留前の液体シンチレータの activity を見積もっている。dilution rate は薄める前後の single rate を NIMscaler を持ちいて測定したものを記した。

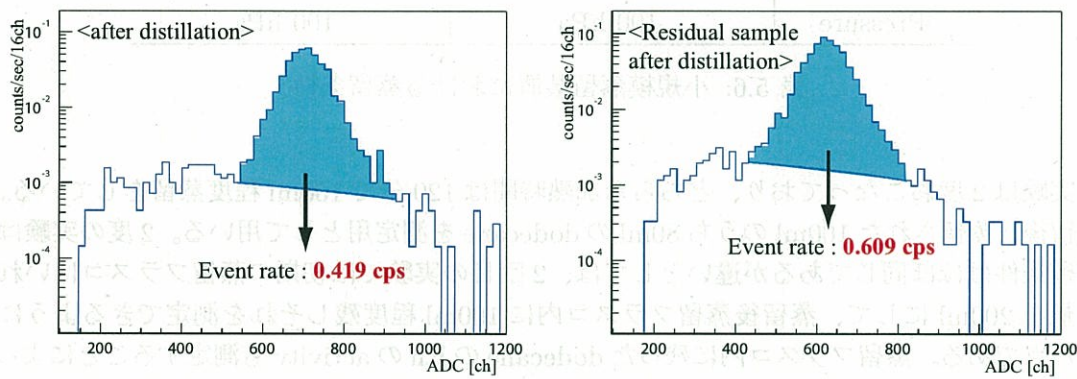


図 5.26: 左が蒸留後のサンプルの ^{214}Po の activity、右が蒸留後蒸留フラスコに残った蒸留されなかったサンプルの ^{214}Po の activity。共に 2 回目の実験結果である。

を示す。1 回目の実験において蒸留前のサンプルのイベントレートの誤差が大きくなっているのは、この実験を行った時点では薄める比率を NIMscaler による single の比較による見積もりではなく、何度も同じ比率で薄めその実験結果から見積もっていたためである。

表 (5.7) からわかるように、2 回の実験の蒸留による Rn の除去率はどちらも 10^{-5} 程度という良い結果が得られている。2 回の除去率は 1.0×10^{-5} と 2.9×10^{-5} とわずかに離れているが、これは最初にいれた液量が 2 回目のほうが若干多かったことや、分留カラムへ充填するステンレススチールの充填の仕方や量の変化に関係している可能性がある。2 回目の実験では残留液も測定しているが、残留液の除去率も蒸留液よりは若干悪いが同じ 10^{-5} の除去率を達成している。この結果より、最初に dodecane に溶かしこまれた ^{222}Rn

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
1 回目	4569 ± 1985 cps	0.0474 ± 0.0023 cps	$(1.0 \pm 0.6) \times 10^{-5}$
2 回目 (蒸留液)	14290 ± 180 cps	0.419 ± 0.008 cps	$(2.9 \pm 0.1) \times 10^{-5}$
2 回目 (残留液)	14290 ± 180 cps	0.609 ± 0.010 cps	$(4.3 \pm 0.1) \times 10^{-5}$

表 5.7: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

は、真空ポンプにひかれ系外に排出されたものと考えることができる。この結果をうけて、テストベンチでも同様な実験を行い Rn の除去率の確認をすることにする。

5.2.4 テストベンチにおける除去率

次にテストベンチの第 2 塔で、KamLAND エリアに保管されている液体シンチレータを蒸留し Rn の除去率を測定する。蒸留条件は表 (5.8) に示す。

蒸留条件	
sample	LS + Rn 500ml
theoretical plate	13
condenser temperature	23°C
pressure	37 hPa

表 5.8: テストベンチ第 2 塔における蒸留条件

サンプルを図 (5.19) で測定する際に、液体シンチレータの成分比が変化すると誤差が生じる可能性があるため、蒸留後に成分比が蒸留前と同じになるように調整する。成分を調整する方法をあわせて、実験手順を以下に示す。

- (1) 液体シンチレータに ^{222}Rn を溶かし、テストベンチ第 2 塔にセットする。
(→ この際、蒸留前のサンプルを 100ml 用意する。)
- (2) 蒸留する際、留出液受け器を 2 台使い、沸点が低い場合 (主に pseudocumene) と沸点が高い場合 (主に dodecane) をそれぞれ別々に収集する。
- (3) 蒸留後、それぞれの受け器のサンプルを密度計を用いて dodecane と pseudocumene の比率を調べ、蒸留前の 80:20 になるように調整して混合し、測定サンプルを作る。
- (4) PPO は微量でかつ沸点が高く蒸留されていないので、測定サンプルに蒸留前の比率の PPO(1.5g/l) を足す。
- (5) 放射平衡まで 3 ~ 4 時間待ち、蒸留前と蒸留後のサンプルをそれぞれ測定する。

以下に、蒸留中の蒸留塔の蒸留フラスコ内と留出液取り出し口の温度変化の図を示す。

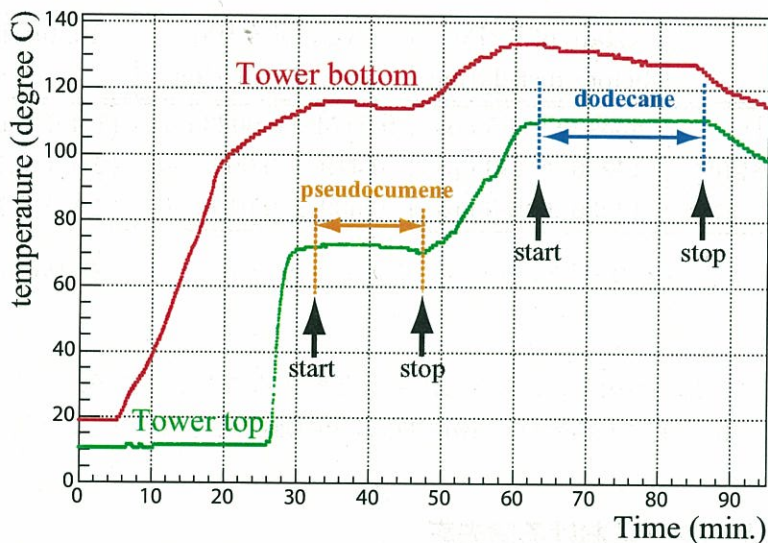


図 5.27: 液体シンチレータ蒸留中の温度の時間変化

グラフに示すように、まず分留カラム内で液体シンチレータが分離され、沸点の低い pseudocumene が留出液取り出し口に到達し、留出液取り出し口の温度が 37hPa における pseudocumene の沸点に一致しているのがわかる。pseudocumene の蒸留が大体終わると徐々に取り出し口の温度が上がり始め、dodecane と pseudocumene の混合状態に移行している。図に示す start と stop は、それぞれ蒸留をおこなったタイミングを示している。大体 pseudocumene の蒸留を終えて温度が上がり始める前に一度蒸留をやめ、温度が dodecane の沸点に到達し一定になったところで留出液受け器を切り替えて再度蒸留を開始する。このように沸点の低い成分と沸点の高い成分とわけて受け器に送っている。そして最終的に 500ml のうち 300ml ~ 350ml 程度蒸留したところで終了する。蒸留後、2つの受け器それぞれのサンプルを密度計を用いて測定したところ、沸点の低い方が dodecane:pseudocumene が 3.9:96.1 で沸点の高い方が 92.5:7.5 だった。PPO 0.15g と、沸点が低い方から 14.2ml、高い方から 85.8ml 取り出し足し合わせると 80:20 の比率で 100ml の液体シンチレータができる。蒸留前と蒸留後の測定結果について delayed event の ^{214}Po の図を以下に示す。

図 (5.28) の左図に示すように、蒸留前の薄めた液体シンチレータの ^{214}Po のレートが 33.74cps で、薄めた比率が 56.31 だったので、蒸留前のレートが 1900cps と見積もられた。また、図 (5.28) の右図が蒸留後の濃度を調整した液体シンチレータの ^{214}Po のレートで 6.35cps だった。結果を表 (5.9) にまとめる。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
蒸留物	1900 ± 12 cps	6.35 ± 0.06 cps	$(3.3 \pm 0.0) \times 10^{-3}$

表 5.9: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率。

結果として得られた除去率は $(3.3 \pm 0.0) \times 10^{-3}$ と、小規模実験装置で得られた値とは

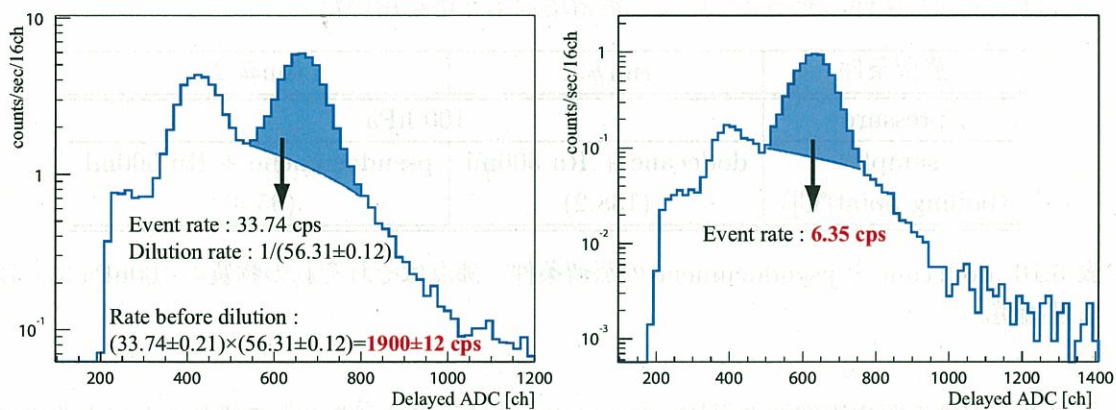


図 5.28: 左が蒸留前のサンプルを薄めたときの ^{214}Po で、右が蒸留後、dodecane と pseudocumene の濃度調節をして測定した ^{214}Po 。

オーダーで 2 程度異なることがわかった。

5.2.5 様々なパラメータによる除去率への影響

テストベンチによる結果と小規模蒸留装置による除去率の結果が 2 オーダーと大きく異なっている。除去率の目標としては $\sim 10^{-3}$ 程度と達成はしているものの、さらに大規模な蒸留装置になった場合この除去率が維持できるとはいえないので、この除去率の差が何に起因しているものなのかを追及する。また、影響のあるパラメータを知り制御することは、より除去率を高めたい Kr にも同じ希ガス元素なので効果があると期待される。

考えられるパラメータとしては、サンプルの違い、温度と圧力、理論段の差、コンデンサーの温度である。また、リーク量による除去率への影響や、gas と留出液の経路による除去率への影響、系のコンダクタンスの違いによる除去率への影響なども考えられる。一つずつ条件を整え実験をし、それぞれのパラメータの除去率への影響を見積もる。

サンプルの違いによる除去率への影響

まず考えられる除去率への影響は、dodecane と pseudocumene のサンプルの違いによる影響である。2 つの物質の化学的な構造による違い (Rn の溶解度の違いも含む)、沸点の違いが Rn の除去率に影響してくる可能性がある。図 (5.16) から高温領域の pseudocumene と dodecane の Rn の溶解度を外挿して考えると (dodecane はないので構造の似ている toluene で代用する)、100hPa のそれぞれの沸点は 95.8°C と 138.2°C と dodecane のほうが高いが、pseudocumene のほうが溶解度曲線の傾きが急であるので、溶解度自体には 1.5 倍程度の差しかないことがわかる。次に 100hPa における沸点の違いについて考えると、温度差は 45°C 程度あり、Rn と沸点が離れているほうがより分離がよいと考えられるので、溶解度の違いとあわせて若干 dodecane のほうが有利と予想される。以上のことを考慮にいたした上で実験をおこなう。

表 (5.10) にサンプルの差を確認するための蒸留条件を示す。表にあげていない条件に関

しては全て同じ条件にそろえていて、蒸留塔は第2塔を用いた。

蒸留条件	run# 1	run# 2
pressure	100 hPa	
sample (boiling point[°C])	dodecane + Rn 500ml (138.2)	pseudocumene + Rn 500ml (95.8)

表 5.10: dodecane と pseudocumene の蒸留条件。沸点はそれぞれの物質の 100hPa における理論値。

以後、実験手順や測定後の ^{214}Po の activity のグラフは同じことの繰り返しになるので必要な場合を除いて省略する。実験結果について、表 (5.11) に示す。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
run# 1	9710 \pm 120 cps	10.10 \pm 0.12 cps	(1.0 \pm 0.0) $\times 10^{-3}$
run# 2	18010 \pm 220 cps	47.85 \pm 0.54 cps	(2.7 \pm 0.0) $\times 10^{-3}$

表 5.11: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

得られた除去率はそれぞれ $\sim 10^{-3}$ で、factor が 3 程度異なっている。これは、最初に予想した範囲と大体あっているといえる。液体シンチレータは dodecane と pseudocumene の比率が 4:1 なので、pseudocumene による影響はそれほど大きいものではないということが確認された。

温度と圧力の除去率への影響

続いて、温度と圧力の除去率への影響を見積もる。基本的に蒸留する時に変化させるパラメータとしては圧力だけであるが、圧力を下げると同時に蒸留するサンプルの沸点も下がる。よって、サンプルは圧力が下がるという効果と沸騰する温度が下がるという効果の 2 つの影響を受ける。温度については、先ほどのサンプルの違いのところでも話題になったが、高いほど Rn との分離がよくなり除去率が高まる可能性が高い。次に圧力について考えると、Henry の法則から溶質が気体である場合、溶液中の気体のモル分率と気相での圧力が比例するので、結果として気体の溶解度は圧力に比例することになる。つまり、圧力が低いほどサンプル中への Rn の溶解度が低くなり、Rn の除去率はよくなると期待される。このように相反する影響があるため、実際にどちらの影響がより強いのか、もしくは同じぐらいであるのかを調べる必要がある。来年度建設予定の蒸留塔は、今のところ 20 ~ 25hPa 程度と高真空を予定している¹⁰。そのため、本論文において実験でよく用いている 100hPa という場合と、より高真空にした 37hPa の場合と他の蒸留条件をそろえて蒸留し、温度と圧力の効果を確認することにする。蒸留条件は表 (5.12) に示す。

上記の蒸留条件で実験を行った結果、表 (5.13) のような結果が得られた。

¹⁰熱による液体シンチレータの劣化を注意して沸点をさげるためこの値に決められた。

蒸留条件	run# 3	run# 4
sample	dodecane + Rn 500ml	
pressure	100 hPa	37 hPa
(boiling point of dodecane[°C])	(138.2)	(113.3)

表 5.12: 圧力の変化による影響を確認するための蒸留条件。dodecane の沸点はそれぞれの圧力における理論値。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
run# 3	9130 \pm 110 cps	8.93 \pm 0.11 cps	$(9.8 \pm 0.2) \times 10^{-4}$
run# 4	1455 \pm 18 cps	6.02 \pm 0.07 cps	$(4.1 \pm 0.1) \times 10^{-3}$

表 5.13: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

表(5.13)からわかるように、圧力が100hPaのほうがfactorで4ほど除去率が良い。この結果をうけて、圧力による影響よりも、温度による影響のほうが大きいということが確認された。実際の大規模装置での蒸留条件は20~25hPaと高真空なので、温度が低いためにRnの除去率に関して若干悪くなる可能性がある。

コンデンサーの温度と理論段の違いによる除去率への影響

次にコンデンサーの温度と理論段の違いによる除去率への影響について調べる。それぞれ独立のパラメータである。コンデンサーは、分留カラムの上部につけられているもので、蒸留フラスコで熱されて気体となったサンプルを分留カラム上部で凝縮させるためのものである。テストベンチの第2塔では、このコンデンサーに流す水の温度を調整することができ¹¹、水温の範囲内で温度を変化させることができる。PPOの蒸留以外の場合、普通は水温(~23°C)で使用している。コンデンサーの温度を23°Cより高くした場合、それがサンプルのdodecaneやpseudocumeneのその気圧における沸点より高くない場合¹²、Rnの沸点とより温度が離れることになるのでRnが排気されやすくなり除去率が高くなる可能性がある。ただし、もともとRnは沸点が-61.9°Cと低く常に気体の状態なので影響を受けない可能性も高い。

次に理論段の違いによる除去率への影響について考える。普通なら理論段が多ければ多いほど沸点の違うものとの分離がよくなると考えられるが、それは溶媒よりも溶質(不純物)のほうが沸点が高い場合である。RnやKrのように溶媒であるdodecaneやpseudocumeneより圧倒的に沸点が低く常温では気体であるような物質の場合、溶媒を熱して気体にした段階で、RnやKrはほぼ溶媒と分離していると考えられる。理論段を増やすと上昇蒸気と下降する凝縮液との接触面積が増え、逆に上昇蒸気となって排出されようとしているRn

¹¹第2塔ではPPOも蒸留できる設計になっているので、PPOが塔上部で凝固しないようにこのように設計された。

¹²沸点より高いとサンプルも気体のまま真空ポンプによって系外に排気される。

が下降する凝縮液にとりこまれることも予想される。また、理論段を増やすと蒸留フラスコと蒸留塔上部で圧力差が増え(圧力損失)、その分排気される気体の流れが悪くなり、除去率に影響する可能性もある。

以上のような理由から、コンデンサーの温度と理論段を変化させて実験をおこなった。蒸留条件を表(5.14)に示す。

蒸留条件	run# 3	run# 5	run# 6
sample	dodecane + Rn 500ml		
pressure	100 hPa		
theoretical plate	6	13	13
condenser temperature	23	23	77

表 5.14: 理論段とコンデンサー温度の影響を確認するための蒸留条件

理論段を6段と13段の場合、コンデンサーの温度を23°Cと77°Cの場合と組み合わせて3パターンの実験を行った。(run# 3は前節における実験で併用している。) 実験結果について表(5.15)に示す。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
run# 3	9131 ± 113 cps	8.93 ± 0.11 cps	$(9.8 \pm 0.2) \times 10^{-4}$
run# 5	6597 ± 99 cps	13.01 ± 0.15 cps	$(2.0 \pm 0.0) \times 10^{-3}$
run# 6	4226 ± 59 cps	5.823 ± 0.068 cps	$(1.4 \pm 0.0) \times 10^{-3}$

表 5.15: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

表(5.15)に示すように、3回の実験における結果に大きな違いがないことがわかる。表にはあげていないが、前述したrun#1とrun#5はまったく同じ蒸留条件でおこなっており、run#1の除去率は 1.0×10^{-3} であったので、同じ蒸留条件でもfactor2程度の誤差はあるものと考え、コンデンサーの温度も理論段もRnの除去率には影響しないといえる。

リーク量による除去率への影響

次にリーク量による除去率への影響について実験を行う。基本的に、RnやKrは最初溶媒に溶け込んでおり、その溶媒が蒸留フラスコ内で熱された後溶媒と共に上昇蒸気となって、溶媒はコンデンサーで凝縮されRnやKrは系外に真空ポンプによって排出されると考えられている。そのため、上昇蒸気量を増やす系外から系内に流れこむリーク量が影響してくる可能性が考えられる。リークがある場合そのリークガスがキャリアーガスとして働き、その分RnやKrのような希ガス元素を排出しやすくし、除去率をよくすると考えることができる。また上昇蒸気が溶媒以外の系外からの空気などであれば、下降してくる凝縮液と接触することで、凝縮液をパージしRnを追い出すとも想像できる。

この実験は小規模装置とテストベンチの除去率の差を直接的に説明するよう意図した実験ではないが、リーク量による影響を定量的に確認するために、図(5.29)のようなセットアップを作った。蒸留フラスコの上側に流量計と窒素ポンプを取り付け、蒸留中に窒素をある一定のレートで送りこめるようにした。真空ポンプへの入り口は分留カラムの最上部

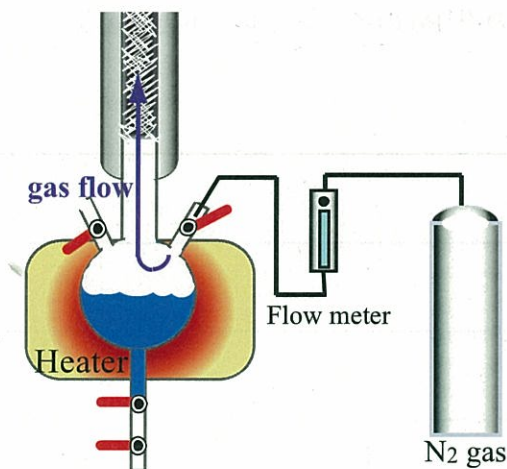


図 5.29: 蒸留塔下部から N_2 を送り込むためのセットアップ

(コンデンサーの上) と、留出液の 2 台の受け器の部分と 3 箇所についているので、この 3 つの入り口に送りこまれた窒素が流れ排気される。(実際は、蒸留中は 2 台の受け器のうち同時にバルブを開けることはないので真空ポンプへの入り口は 2 つで、気体の流れも 2 系統である。)

蒸留中に流す窒素の流量について、500ml/min、1500ml/min、2000ml/min と 3 パターンについて実験をおこなう。蒸留条件について、表(5.16)に示す。

蒸留条件	run# 5	run# 7	run# 8	run# 9
sample	dodecane + Rn 500ml			
pressure	100 hPa			
heating time	90 min			
N_2 flow rate[ml/min]	0	500	1500	2000

表 5.16: リーク量による効果を確認するための蒸留条件。run#5 は前述した実験結果を用いている。

今回は、窒素の流量による Rn の除去率への影響をみるために、サンプルの加熱時間(つまり、窒素を蒸留塔内に送りこんでいる時間)を 90 分にそろえている。実験結果につい

て、表 (5.17) に示す。また、表 (5.17) の結果を用いて、窒素の流量と dodecane からの Rn の除去率について図 (5.30) にまとめた。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
run# 5	6597 \pm 99 cps	13.01 \pm 0.15 cps	$(2.0 \pm 0.0) \times 10^{-3}$
run# 7	7813 \pm 109 cps	6.098 \pm 0.073 cps	$(7.8 \pm 0.1) \times 10^{-4}$
run# 8	12388 \pm 157 cps	5.48 \pm 0.07 cps	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^{-4}$
run# 9	13288 \pm 171 cps	3.97 \pm 0.05 cps	$(3.0 \pm 0.1) \times 10^{-4}$

表 5.17: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

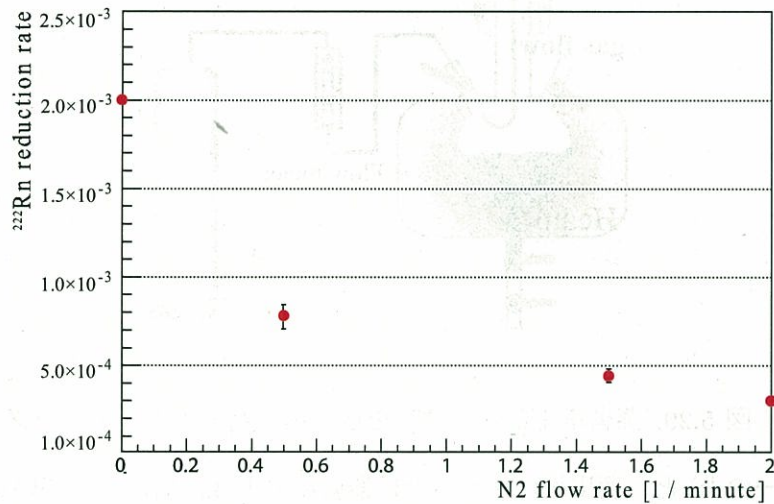


図 5.30: 蒸留塔下部からの N_2 flow rate と Rn の除去率の関係

図 (5.30) からわかるように、窒素の流量に比例して Rn の除去率がよくなっている。ただし、ガス流量に比例して効果があるのかといえばそうでもなく、500ml/min より多い流量では頭うちの傾向が見られる。また、実験的に 2000ml/min 以上の流量で窒素を流すと、蒸留が不安定になり fladding が非常におきやすくなるので、これ以上の量を想定するのは現実的ではない。

この実験からは、意図的に上昇蒸気量を図 (5.29) のようなセットアップを組み増やせば、約 1 オーダー除去率をよくできることがわかった。

gas と留出液の経路による除去率への影響

ここでは、gas と留出液の経路による除去率への影響について図 (5.31) を用いて説明する。便宜上、図 (5.31) の受け器の左側を A、右側を B、蒸留フラスコを C と名前をつけておく。前述したように真空ポンプへつながる経路は 3 つあり、受け器 A を通るガスの経

路を経路 A、受け器 B を通るガスの経路を経路 B としておく。経路 A、B については図 (5.31) に示すように開閉が可能である。普段蒸留中に使用している側の受け器の真空ポン

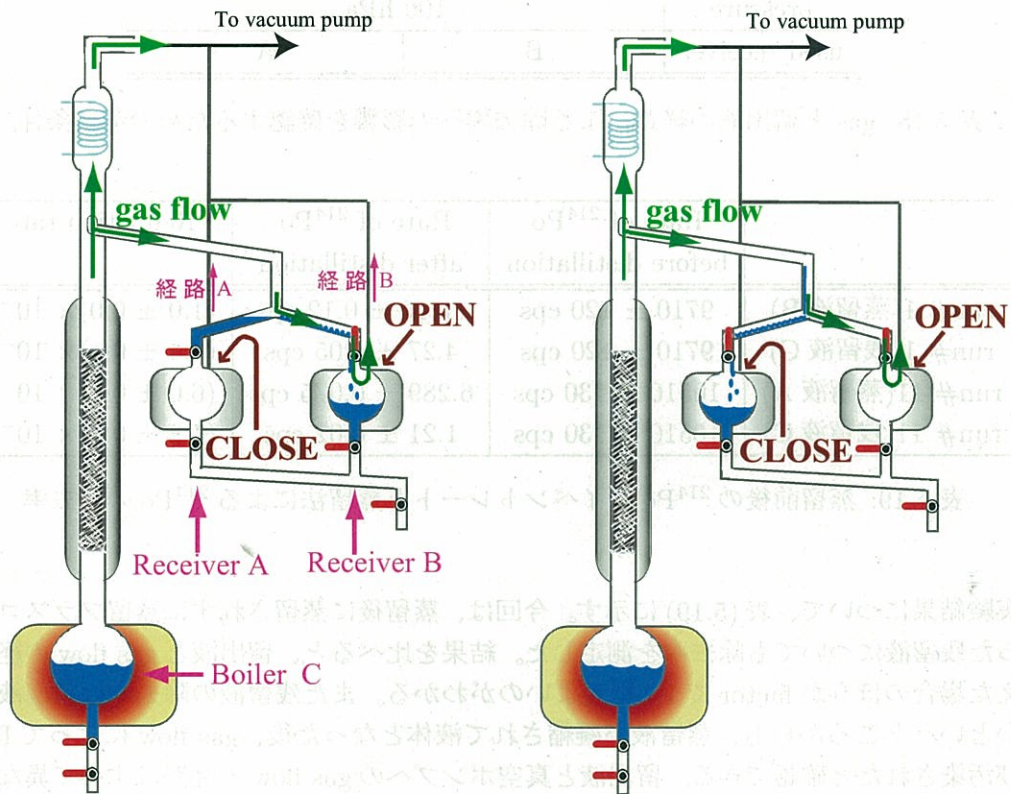


図 5.31: 留出液と真空ポンプへの gas flow が同じ経路の場合 (左図) と途中から異なっている場合 (右図)。装置の構造上、留出液は左の留出液受け器にほとんどが流れるので左図では左の受け器のバルブを閉じている。

プへの経路は開いた状態にしているが、これは、蒸留中に凝縮された液が受け器へと流れる時にその液体と同じ経路を排気される gas も同様に受け器の方向へ流れていくことになる。その結果、凝縮液に排気されようとしている R_n が溶け込み、 R_n の除去率を悪くしている可能性が考えられる。そこで図 (5.31) のように、受け器 A、B を用いて 2 通りの場合の実験を行い、gas と留出液の経路を同じにした場合と異なる場合での除去率への影響をみる。ただし、経路が異なる場合といっても、図 (5.31) に示すように留出液入り口を通り途中で配管が分岐したところから後の経路についてのみであり、その前の配管での R_n による留出液の汚染の影響まではみていない。また、留出液は凝縮されてから経路を流れていくときに図 (5.31) に示すように、左側をつたって流れるために Receiver A の方向に流れる。そのため、図 (5.31) の左図では Receiver A へのバルブは閉じている。

表 (5.18) に蒸留条件を示す。run#1 はすでにおこなわれた結果を用いている。run#11 (1.13 右図) では経路 A を閉じ蒸留した留出液を左側のフラスコに流している。これによって、留出液が途中で二股に分岐する経路の先において真空ポンプへの gas flow がないので、分岐する先では gas flow による留出液への R_n の溶け込みがなくなる。

蒸留条件	run# 1(5.31 左図)	run# 11(5.31 右図)
sample	dodecane + Rn 500ml	
pressure	100 hPa	
used receiver	B	A

表 5.18: gas と留出液の経路による除去率への影響を確認するための蒸留条件。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
run# 1(蒸留液 B)	9710 \pm 120 cps	10.10 \pm 0.12 cps	$(1.0 \pm 0.0) \times 10^{-3}$
run# 1(残留液 C)	9710 \pm 120 cps	4.27 \pm 0.05 cps	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^{-4}$
run# 11(蒸留液 A)	10510 \pm 130 cps	6.289 \pm 0.075 cps	$(6.0 \pm 0.1) \times 10^{-4}$
run# 11(残留液 C)	10510 \pm 130 cps	1.21 \pm 0.02 cps	$(1.2 \pm 0.0) \times 10^{-4}$

表 5.19: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

実験結果について、表 (5.19) に示す。今回は、蒸留後に蒸留されずに蒸留フラスコ内に残った残留液についても除去率を測定した。結果を比べると、留出液と gas flow の経路を変えた場合のほうが factor で 1.7 程度よいのがわかる。また残留液の除去率は留出液より良いということからも、蒸留液が凝縮されて液体となった後、gas flow によって Rn に再び汚染されたと確認できる。留出液と真空ポンプへの gas flow の経路はすべて異なっているわけではなく、一部分であるので留出液と gas flow の経路による除去率への影響は大きいということがいえる。

系のコンダクタンスの違いによる除去率への影響

ここで述べる系のコンダクタンスの違いというのは、すでに述べた gas flow 量による除去率への影響と関連している。gas flow 量が増えることによって除去率がよくなるという結果を示したが、これは本質的には gas flow 量が増えることによって気体の流量が大きくなり、除去率がよくなるということを示している。そこで、系のコンダクタンスを変化させることによって除去率にどのように影響がでてくるのかを実験をおこない、確認することにする。

コンダクタンスを変化させる方法として、真空ポンプへつながる経路 3 つのうち開閉可能な 2 つの留出液受け器について操作する。そこで、図 (5.32) に示すような 2 つの場合の実験を考えた。今回も便宜上、受け器の左側を D、右側を E、蒸留フラスコを F と名前をつけておく。また表 (5.20) には、蒸留条件について示す。

図 (5.32) の左図は経路 D と E のバルブを閉じ受け器への gas flow を遮断し、蒸留系内の gas は全てコンデンサー上部の真空ポンプへの入り口を通すことにする。逆に右図のほうは、経路 D と E のバルブを開き、コンダクタンスがもっとも大きい状態にして、蒸留をおこなう。ただし図 (5.32) の左図のように、常にバルブを閉めた状態にしていると、受

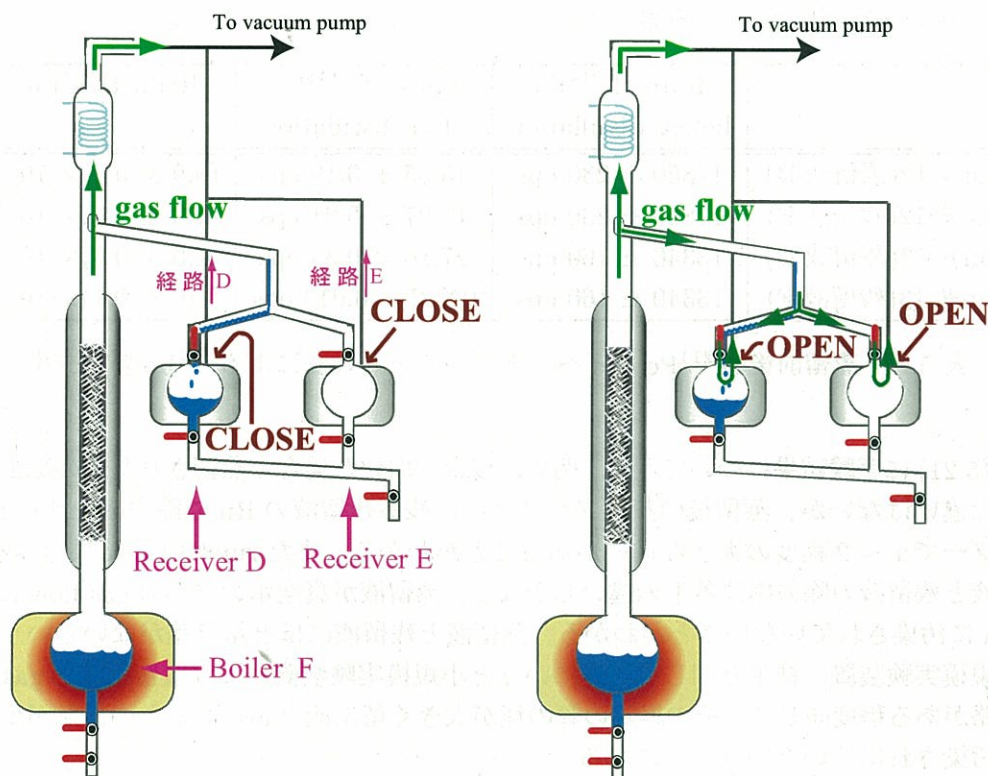


図 5.32: 留出液受け器の真空ポンプへの通じるバルブを両側閉めた場合 (左図) と両方開いた場合 (右図) のガスの流れ

け器側が孤立した状態になってリークと共に大気圧に戻っていき、分留カラム内と大きな圧力差を生み、蒸留を始めるときにその圧力差を破るのに装置に大きな負担がかかる。そのため、留出液取り出し口は最初は開いた状態にして受け器側の系内も真空にひけるようにしておき、分留カラム内を蒸気が昇ってきて留出液取り出し口付近に液体が見えはじめたときに、取り出し口を閉じることにする。大体取り出し口を閉じてから全還流状態になるまで5分程度であるが、この程度の時間なら分留カラム側と受け器側で大きな圧力差が生まれないので問題はない。また右図のほうでは、前の節で確認したように真空ポンプへの gas flow と留出液の受け器への経路が同じなので、蒸留液に関しては Rn に汚染されると考えられる。そのためコンダクタンスの影響をみるには、蒸留できずに残った残留液 F

蒸留条件	run# 12(5.32 左図)	run# 13(5.32 右図)
sample	dodecane + Rn 500ml	
pressure	100 hPa	
経路 D	CLOSE	OPEN
経路 E	CLOSE	OPEN

表 5.20: 系のコンダクタンスの影響を確認するための蒸留条件。

の Rn の除去率をみることで確認できる。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
run# 12(蒸留液 D)	17850 \pm 230 cps	15.83 \pm 0.19 cps	$(8.9 \pm 0.2) \times 10^{-4}$
run# 12(残留液 F)	17850 \pm 230 cps	17.97 \pm 0.21 cps	$(1.0 \pm 0.0) \times 10^{-3}$
run# 13(蒸留液 D)	13340 \pm 160 cps	27.26 \pm 0.34 cps	$(2.0 \pm 0.0) \times 10^{-3}$
run# 13(残留液 F)	13340 \pm 160 cps	0.882 \pm 0.013 cps	$(6.6 \pm 0.1) \times 10^{-5}$

表 5.21: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

表 (5.21) に実験結果について示す。閉めた場合と開いた場合で蒸留された液の除去率に大きな違いはないが、蒸留後の蒸留フラスコ内に残る残留液の Rn の除去率を比べると、オーダーで 1 ~ 2 程度の大きな違いがあることがわかる。また run#12 の結果をみると、蒸留液と残留液の除去率に若干の違いは少なく、蒸留液が真空ポンプへの gas flow によって Rn に汚染されていないことがわかる。蒸留液と残留液にほとんど差がないということは小規模実験装置の結果と同じで、逆にいうと小規模実験装置のように留出液と gas flow の経路がある程度同じでもその経路の管の径が大きく留出液と gas flow との接触が少なければ汚染されにくいということになる。

これらの結果をまとめると、小規模実験装置での除去率とこのテストベンチ第 2 塔での除去率の差を生み出したもっとも大きな原因が、系のコンダクタンスの大きさと gas flow と留出液の経路と経路の径の大きさということがいえる。

テストベンチ第 1 塔における除去率

最後に、テストベンチの第 2 塔よりも大規模な装置である第 1 塔を用いて蒸留を行い、この節で述べた重要なパラメータがどれほど除去率に影響してくるかを確認し、今年度建設する大規模蒸留装置での除去率がどの程度になるのかを予測する。表 (5.2.5) に、テストベンチ第 1 塔における蒸留条件を示す。

蒸留条件	
sample	dodecane + Rn 1800ml
theoretical plate	8
heating time	120 min
condenser temperature	8°C
reflux ratio	1:1(還流液:留出液)
the gateway to vacuum pump at receiver	OPEN
pressure	100 hPa

表 5.22: テストベンチ第 1 塔における蒸留条件

テストベンチの第 1 塔では、還流比を測定できるが、還流比は大容量の液体を蒸留する

目的の場合ある程度大きくとらざるを得ない。そのため、本実験において設定されている還流比 1:1 は基本的に変化はさせない。また留出液受け器の真空ポンプへの入り口は系全体の真空を保つために常に開いている。テストベンチ第 1 塔と第 2 塔での条件の違いは、系全体のコンダクタンスの違いがある。また、gas と留出液の経路はともに同じであるが第 1 塔と第 2 塔を比べると、第 1 塔のほうは経路の途中に flow meter があり径が細く、かつ長い。そのため真空ポンプへの gas flow と留出液が接触する面積が増える。しかし、径が細い分コンダクタンスも小さいので gas flow は第 2 塔に比べれば小さくなると考えられる。このように、それぞれ Rn の除去に関してプラスとマイナスの原因をもっているので実際に実験を行い結果を考察することにする。

実験結果について、表 (5.23) に示す。蒸留量に関しては、テストベンチの第 2 塔では毎回 500ml のうち 300ml 程度蒸留していたので、大体同じ比率になるように蒸留した。蒸留量は表に示す。また、今回は蒸留液だけでなく、系のコンダクタンスの影響も考察するために残留液についても測定した。

	Rate of ^{214}Po before distillation	Rate of ^{214}Po after distillation	Reduction rate
蒸留液 (1100ml)	1089 ± 13 cps	0.1654 ± 0.0042 cps	$(1.5 \pm 0.0) \times 10^{-4}$
残留液 (700ml)	1089 ± 13 cps	0.0299 ± 0.0016 cps	$(2.7 \pm 0.2) \times 10^{-5}$

表 5.23: 蒸留前後の ^{214}Po のイベントレートと蒸留法による ^{214}Po の除去率

結果を見ると、蒸留した後でも 1.5×10^{-4} と、テストベンチ第 2 塔でほぼ同じ条件で実験をおこなった run#1 の実験結果 1.0×10^{-3} よりもオーダーで 1 ぐらいよい。また残留液に関しても同じく、 2.7×10^{-5} と run#1 の実験結果 4.4×10^{-4} とオーダーで 1 よい。また残留液の 10^{-5} という値は、小規模実験における残留液の除去率 4.3×10^{-5} と同じぐらいである。

よって、テストベンチ第 1 塔は第 2 塔と比べて留出液と gas flow の経路が同じことによる除去率への影響は同程度で、系全体のコンダクタンスとしては第 1 塔のほうが第 2 塔よりよいということになる。

5.2.6 除去率にたいする Rn 濃度の初期値による依存性

現在実験室でおこなっている実験は、バックグラウンドレベルが $200\text{Bq}/\text{m}^3$ 程度¹³ なので実際目標としている $1\text{mBq}/\text{m}^3$ 以下という絶対値より、バックグラウンドレベルははるかに高い。そのため、除去率としては目標値を達成しているものの、絶対値として達成しているわけではなく、蒸留前の絶対値としての Rn 量が少ない場合、この章で得た除去率が維持できる保証はない。

ここでは、蒸留前の Rn 濃度の初期値によって除去率が変わるかどうかを簡単に確認するために、本論文における全実験データに関して蒸留前の ^{214}Po のレートとその時の除去率の関係をプロットした。図 (5.33) に結果を示す。

¹³すでに述べたようにバックグラウンドレベルは $0.02\text{Bq}/100\text{ml}$ 程度なのでこれを 1m^3 あたりになおすと、 $200\text{Bq}/\text{m}^3$ 。

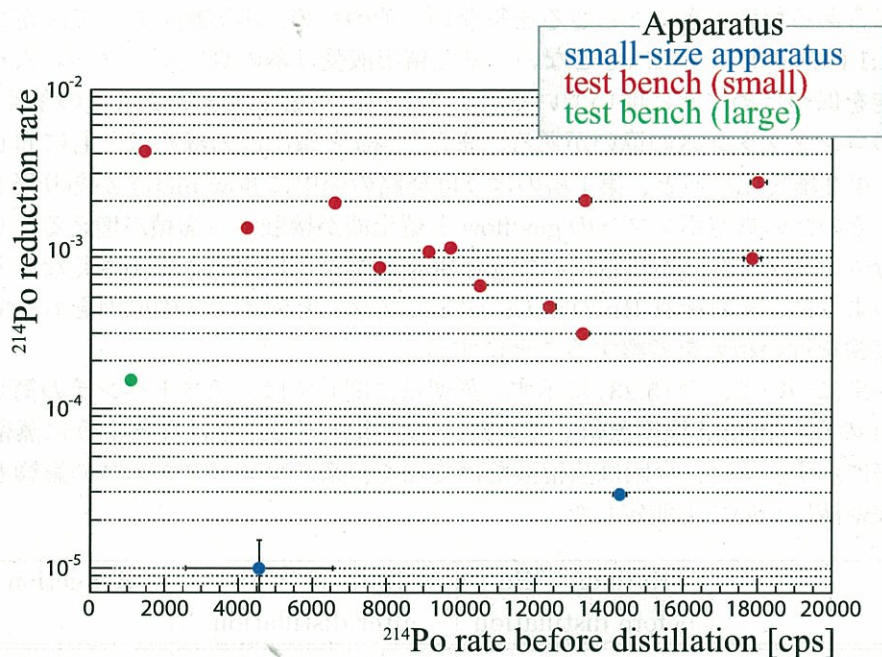


図 5.33: Rn の除去に関する全実験データの蒸留前の ^{214}Po のレートと除去率の関係。使用した蒸留装置によって色分けしており青が小規模蒸留装置で赤がテストベンチ第 2 塔、緑がテストベンチ第 1 塔を示している。

蒸留条件は個々の実験によって違っているのですが、一概に決めつけることはできないが、全体的に点は分散しており特に初期 Rn 量が大きいために除去率が悪くなっている（つまり初期 Rn 量に除去率が依存している）ということはないように見える。

5.3 希ガス元素の除去率のまとめ

Kr の除去率の結果をまとめると、

小規模蒸留装置 : Reduction rate $< (1.4 \pm 0.1) \times 10^{-5}$ (dodecane, 100hPa)

テストベンチ (1 回目) : Reduction rate $< (1.3 \pm 0.1) \times 10^{-5}$ (LS, 37hPa)

テストベンチ (2 回目) : Reduction rate $< (1.4 \pm 0.1) \times 10^{-5}$ (LS, 37hPa)

である。Kr の除去率は全て 10^{-5} 以下となっており、目標とする $10^{-5} \sim 10^{-6}$ は十分に達成できると思われる。Rn と比べ Kr の除去率がよい原因は、Kr が Rn よりより原子番号が低く軽い気体であり、かつ液体シンチレータへの溶解度が低いことがあげられる。

続いて、Rn の除去率の結果をまとめると、

小規模蒸留装置 (1 回目) : Reduction rate $= (1.0 \pm 0.6) \times 10^{-5}$ (dodecane, 100hPa)

小規模蒸留装置 (2 回目) : Reduction rate $= (2.9 \pm 0.1) \times 10^{-5}$ (dodecane, 100hPa)

テストベンチ (第 2 塔) : Reduction rate $= (3.3 \pm 0.0) \times 10^{-3}$ (LS, 37hPa)

テストベンチ (第 1 塔) : Reduction rate $= (1.5 \pm 0.0) \times 10^{-4}$ (dodecane, 100hPa)

- dodecane と pseudocumene の除去率は、pseudocumene のほうが factor3 程度悪い。
- 圧力と温度の違いによる除去率の差は、37hPa のほうが 100hPa の場合より factor4 程度悪い。
- コンデンサーの温度と理論段による除去率への影響はない。
- リーク量を意図的に増やすことで、除去率を 1 オーダー程度良くすることができる。
- 真空ポンプへひかれる gas の経路と留出液の経路の一部分を異なるように変化させた場合、factor で 1.7 除去率がよくなった。
- 系のコンダクタンスが小さいとオーダーで除去率が悪くなる可能性がある。

以上のようになる。Rn の除去率は余裕をもって、テストベンチ第 2 塔での結果を用い $\sim 10^{-3}$ と見積もっておく。

6.1 蒸留による Pb の除去

6.1.1 Pb の性質

原子番号	82
原子量	207.2
融点	327.5℃
沸点	1744℃
密度	11.34g/cm ³
蒸気圧	1.013×10 ⁵ Pa 時 0.0001Pa
熱伝導率	35.3W/mK
熱膨張係数	27.1×10 ⁻⁶ /K
比熱	128J/kgK
融熱	23.2kJ/kg
汽化熱	177.2kJ/kg
凝固熱	-23.2kJ/kg
蒸発熱	-177.2kJ/kg
熱安定性	安定
酸化性	安定
還元性	安定
毒性	有害
危険性	有害
環境影響	有害
取り扱い	注意
保存	乾燥
廃棄	有害

第6章 液体シンチレータからの放射性金属元素の除去

この章では、半減期 22.3 年をもち、崩壊した後に大きなバックグラウンドである ^{210}Bi を生み出す ^{210}Pb と ^{40}K の蒸留法による除去について述べる。これらの元素は金属元素であり、前章で述べた希ガス元素とは違い沸点が非常に高い。そのため、蒸留法の原理を適用して除去を考えることができる。かつ希ガス元素は配管継ぎ目からのリークや配管内の残った空気で液体シンチレータが再汚染される可能性があるため 1 回の純化の循環で目標の除去率を達成しなければならないが、金属元素の除去は複数回の蒸留も可能となる。

6.1 蒸留による Pb の除去

6.1.1 Pb の性質

蒸留法によって鉛の除去をおこなう前にまずは鉛の性質について説明する。鉛の化学的な性質について表 (6.1) に示す。今まで述べてきた物質の中でもっとも沸点と融点が高く、液体シンチレータの成分とはそれぞれ温度が離れている。よって、4 章で述べた蒸留法の理論に基づいて蒸留をおこなえばもっとも分離が期待できる物質といえる。

原子番号	82
原子量	207.2
原子半径 (Å)	1.76
融点 (°C)	327.5
沸点 (°C)	1750
密度 (g/cm^3)	11.34
イオン化エネルギー (eV)	7.416
電子親和力 (eV)	1.1

表 6.1: 鉛の性質

ただし鉛は今までの希ガス元素とは違い、単体で存在するだけでなく他の物質と化合物を形成する。そのため、鉛の化合物の性質についても考える必要がある。図 (6.1) に、液体シンチレータ中で予想される鉛の形態について示す。 ^{210}Pb は ^{214}Po が α 崩壊し生成される。主にイオン性の鉛として存在していると考えられるが、液体シンチレータの大部分を占める dodecane からのアルキル基と結合し有機鉛として存在する可能性もある。また液体シンチレータ中に溶け込んでいる微量の酸素と結合し酸化鉛を形成する可能性も考え

られる。図(6.2)に鉛の化合物の性質についてまとめる。

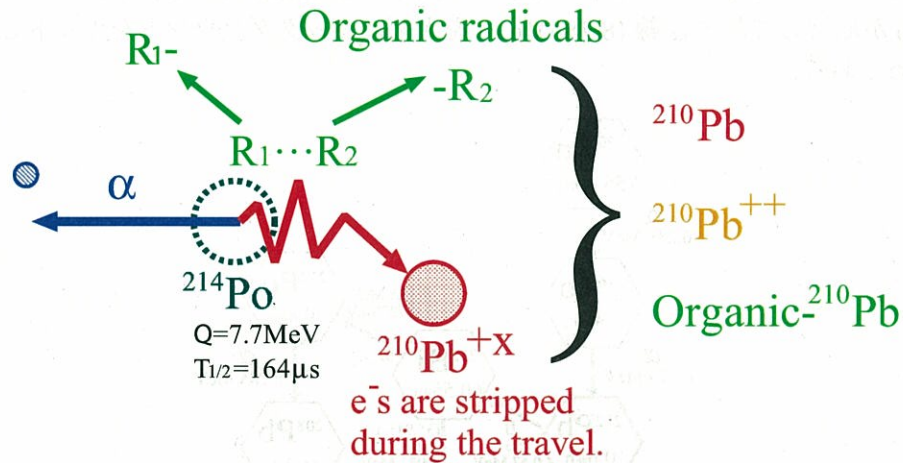


図 6.1: 鉛の化学的形態。主にイオン性の鉛が考えられ、その他にも比較的沸点の低い有機鉛の存在が考えられる。

化合物の種類	化合物	融点	沸点
alkyl lead	tetramethyl lead($(\text{CH}_3)_4\text{Pb}$)	-27.5°C	110°C (13.3hPa)
	tetraethyl lead($(\text{C}_2\text{H}_5)_4\text{Pb}$)	-136.8°C	200°Cで分解
lead oxide	PbO(lead(II) oxide)	888°C	1470°C
	PbO ₂ (lead peroxide)	290°Cで分解	—
	Pb ₃ O ₄ (lead tetroxide)	500°Cで分解	—

表 6.2: 液体シンチレータ中に存在する可能性のある鉛の化合物の性質

表(6.2)の中では、特に一番上の tetramethyl lead が沸点が低く、蒸留する際、注意する必要があることがわかる。また tetraethyl lead についても 200°Cで分解はするものの、蒸留は減圧下でおこなわれ、200°C近くまで加熱するのはPPOの蒸留の場合のみであるので、液体シンチレータのような混合蒸留をおこなう場合、dodecane と pseudocumene の蒸留の際に蒸留物に混じってくる可能性がある。酸化鉛については、もともと酸素の存在量も少なくかつ、鉛が酸化物を形成したとしてもそれぞれの融点が非常に高いので除去に関して問題はないと思われる。

以下、このような鉛の化合物を考慮した上で、蒸留をおこなうことにする。

6.1.2 Pb 測定系

ここでは、Pbの測定系について述べる。基本的には、Rnの測定系と同じく遅延同時計測を用いてPbの activity を測定する。ただし、実際にKamLANDで問題となっているのは、ウラン系列の²¹⁰Pbであるが、実験ではトリウム系列の²¹²Pbを用いる。その理由

は、トリウム系列の ^{212}Pb は、図(6.2)に示すように10.64時間と比較的半減期が短く、実験的に便利であるということ、 ^{212}Po の半減期が300nsecなので、遅延同時計測によって ^{212}Po が崩壊して出す α 線(8.785MeV)を大幅にバックグラウンドをカットして検出できるためである。

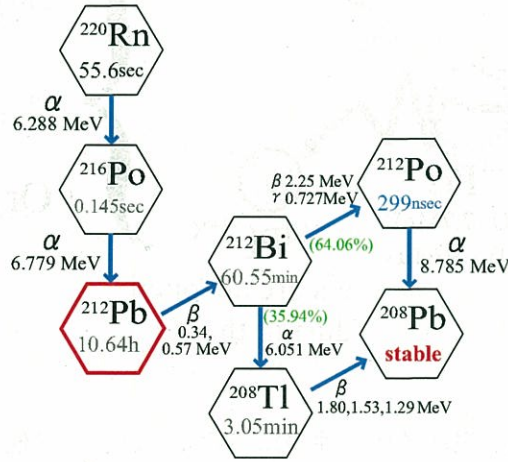


図 6.2: ^{220}Rn から ^{208}Pb までの崩壊図

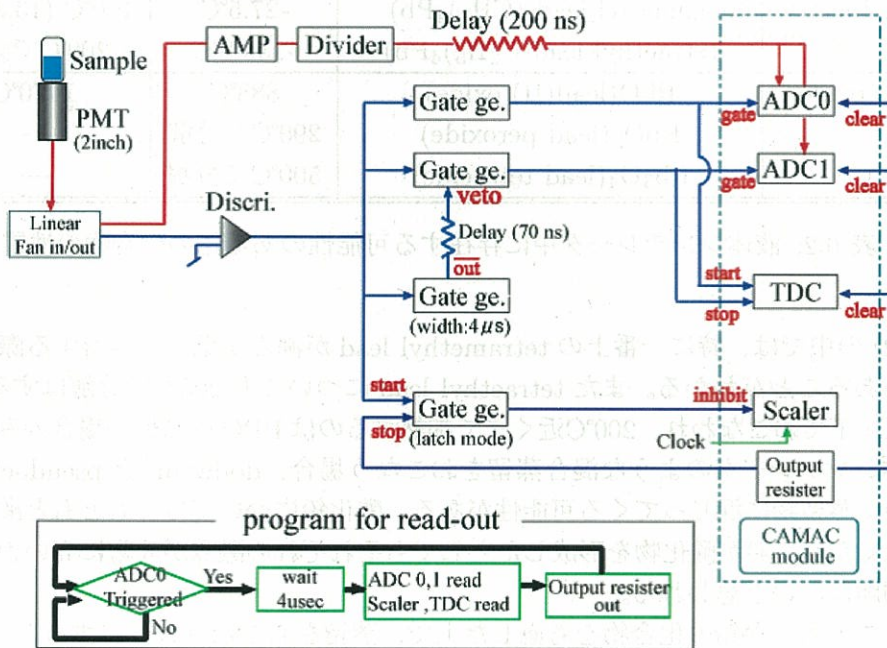


図 6.3: トリウム系列のPo崩壊後の α 線を捕らえるため遅延同時計測を用いた回路

また図(6.2)からわかるように、 ^{212}Pb 以下の元素に関して ^{212}Pb の半減期より長い元素はないので、 ^{212}Po からの α 線のイベントレートを観測し、蒸留前後で比較することで ^{212}Pb の減少率が精度よく測定することができる。

^{210}Pb と ^{212}Pb の違いについてだが、化学的な性質について違いがあるわけではないので、蒸留法という化学的な手法によって見積もった ^{212}Pb の除去率は、 ^{210}Pb に関しても同じ値が得られると考えられる。

次に、 ^{212}Po が崩壊したときに放出する α 線を検出するための、遅延同時計測を用いた測定系について図 (6.3) に示す。基本的には、ほとんどウラン系列の ^{214}Po の後の α 線をとらえる回路と同じであるが、 ^{212}Po の半減期が 299nsec と非常に短いので、delayed event と prompt event の間の時間を測定する時に TDC を用いて測定ができる。

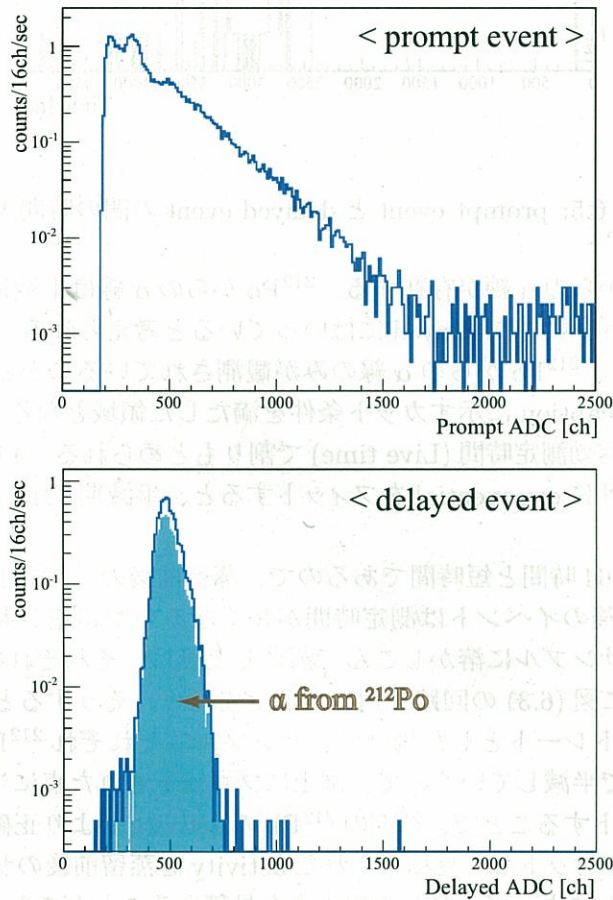


図 6.4: prompt event(図上) と delayed event(図下)。delayed event のカット条件は、 $0 < \text{prompt ADC} < 1000[\text{ch}]$, $200 < \text{delayed ADC} < 4095[\text{ch}]$, $140 < \text{TDC} < 2430[\text{nsec}]$ で、delayed event の青く塗りつぶされた部分がカット条件を満たした領域となる。

続いて、図 (6.3) を用いて ^{220}Rn ¹ を溶かし込んだ液体シンチレータを計測した結果を図 (6.4) に示す。(6.4) の上図が prompt event で下図が delayed event を示す。また、図 (6.5) に TDC で測定された prompt event と delayed event の間の時間差のグラフを示す。prompt event では、 ^{212}Pb 以下の全放射線の重ね合わせになっていて、主に ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl

¹一般にウラン系列の ^{222}Rn をラドンといい、トリウム系列の ^{220}Rn をトロンという。

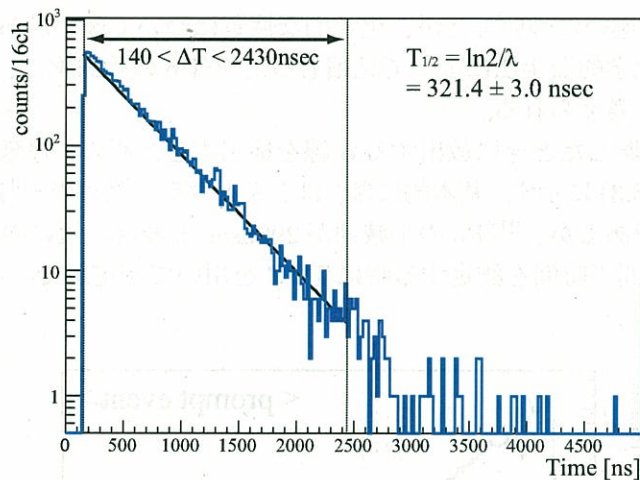


図 6.5: prompt event と delayed event の間の時間差

からの β 線と ^{212}Bi からの α 線が存在する。 ^{212}Po からの α 線は半減期が短いのであまり prompt にはひっかからず主に delayed にはいつていると考えられる。

delayed event では、 ^{212}Po からの α 線のみが観測されているのがわかる。青く塗りつぶされた領域が図の caption に示すカット条件を満たした領域となる。 ^{212}Po のイベントレートはこの面積を有効測定時間 (Live time) で割りもとめられる。TDC のグラフにおいて、カット条件の範囲に exponential をフィットすると、半減期 $321.4 \pm 3.0\text{nsec}$ という値が得られている。

^{212}Pb の寿命は 10.64 時間と短時間であるので、蒸留前後のイベントを測定する時、同時に測定しても蒸留後のイベントは測定時間が長くなるので誤差が大きくなる。そのため、 ^{220}Rn を最初にサンプルに溶かしこんで蒸留した後は、それぞれのサンプル (蒸留前と蒸留後) を定期的に図 (6.3) の回路を用いて測定を行う。そうすると、横軸を時間、縦軸を ^{212}Po のイベントレートとした場合に、サンプルはそれぞれ ^{212}Pb の activity にしたがって 10.64 時間で半減していくので、図上にプロットされた点に半減期 10.64 時間で exponential をフィットすることで、初期の ^{212}Pb の activity がより正確にわかる。こうして、測定された点にフィットして見積もられた activity を蒸留前後のサンプルに関して同じ時間で比較することによって ^{212}Pb の除去率を見積もることができる。

6.1.3 小規模蒸留装置における連続蒸留による除去率

まず、小規模装置を用いて ^{220}Rn を溶かしこんだ dodecane を連続蒸留し ^{212}Pb の除去率を測定する。連続蒸留とは、1 度蒸留して受け器に溜めた液体を、再度蒸留フラスコに移し蒸留するという操作を繰り返すことである。表 (6.1.3) に蒸留条件について示す。連続蒸留による除去率の確認は、6 回おこなったが最初に蒸留フラスコにセットした量が多少違うだけで、すべて蒸留条件は同じである。

実験手順を簡単にまとめると、以下のようになる。

- (1) dodecane に ^{220}Rn に溶かしこみ、蒸留フラスコにセットし熱する。

蒸留条件	
Sample	dodecane + ^{212}Pb 200 ~ 240ml
Pressure	300 hPa
(boiling point[°C])	(170.59)

(→ ここで蒸留前のサンプルを用意)

- (2) 蒸留する際、分留カラム内で flooding² をおこさないように flooding をおこしそうになったら蒸留フラスコを冷やすなど、flooding 液が直接蒸留されないように注意する。
- (3) 蒸留液の一番最初に留出した液は、鉛の低沸点成分を含んでいる可能性があるので、一度真空を止めて捨てる。
- (4) この後、再度蒸留塔内を真空に戻し、手順 (2) に書いてあることを注意して蒸留フラスコに液がほとんど無くなるまで蒸留する。
- (5) 1 回目の蒸留終了後、分留カラムや蒸留フラスコなどを硝酸水でガラスに吸着した鉛を洗浄する。(→ ここで蒸留 1 回の効果を確認するため、蒸留液から 40ml 取り出しサンプルを用意。)
- (6) 洗浄が終われば再度蒸留したものを蒸留フラスコに戻しセットする。
- (7) (2)~(3) の操作を繰り返す。
(→ 複数回の蒸留後、それぞれ効果を確認するためサンプルを用意。)
- (8) 図 (6.3) の回路を用いてそれぞれのサンプルを交互に測定。
- (9) 150 時間ぐらいまで測定を繰り返し、それぞれの ^{212}Po のイベントレートに 10.64 時間の崩壊曲線をフィットし、除去率を見積もる。

実験手順でもっとも重要なところは、手順 (2) の flooding をおこした場合、その液が直接蒸留されないようにすることである。蒸留法の原理のところでも述べたように、flooding した勢いでそのまま蒸留されると分留カラム内で十分に気液接触し特定成分が濃縮されなまま受け器に流れてしまうので、除去率は非常に悪くなる。予備実験の結果では、最終的な除去率に 10^{-1} ~ 10^{-2} 程度の差がうまれることがわかっている。また、実験手順の (3) に関しては予測であり本当に低沸点成分を含んでいるかは確認はしていない。ただし実験的には、最初の留出液が鉛の activity が高いのが確認されている。その結果については、後のテストベンチを用いておこなった蒸留の節で述べる。

実験結果の一例について、図 (6.6) に示す。図では横軸が時間で縦軸が ^{212}Po のイベントレートを示す。赤線が蒸留前、緑が 1 回蒸留後、青が 5 回蒸留後、黄が 7 回蒸留後の結果となっている。図 (6.6) よりそれぞれの蒸留回の activity と蒸留前の activity を時間が 0 のときで比較して除去率を見積もる。6 回の全結果について表 (6.3) に示す。

²³ 章でも述べたが、還流液が充填物上やカラムのくぼみなどで液化し停滞液となっている状態

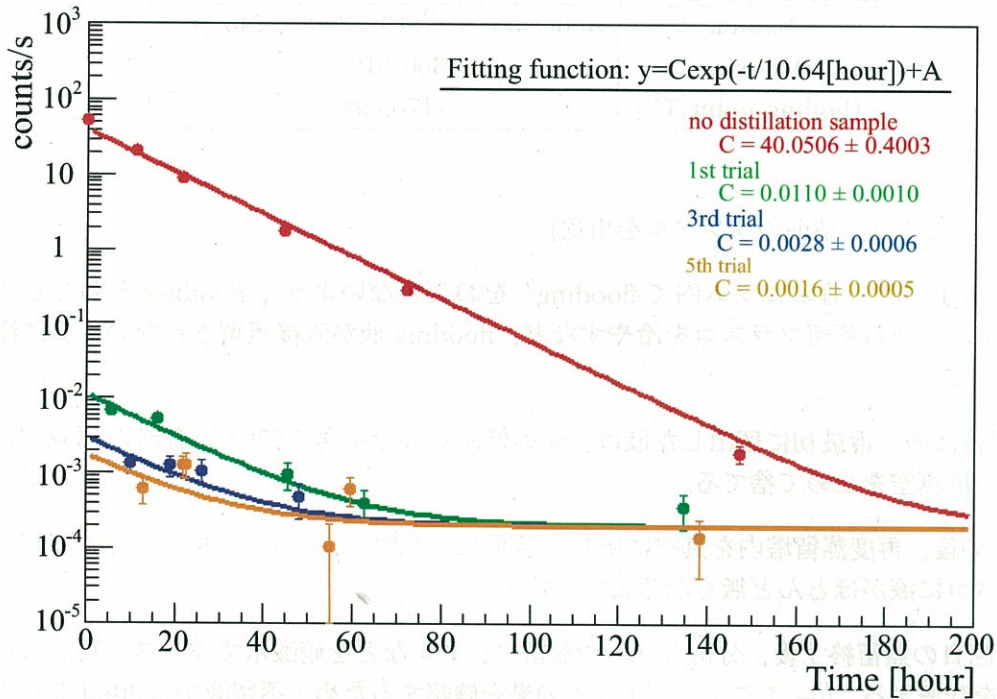


図 6.6: dodecane の蒸留前後の ^{212}Po の activity の時間推移。赤線が蒸留前、緑が1回の蒸留後、青が3回の蒸留後、黄が5回の蒸留後のサンプルとなる。それぞれ0時間の activity を比較することによって除去率が見積もられる。

distillation times	1st	3rd	5th	7th
run#1	$(2.8 \pm 0.3) \times 10^{-4}$	$(7.0 \pm 1.5) \times 10^{-5}$	$(4.0 \pm 1.3) \times 10^{-5}$	
run#2	$(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-4}$	$(4.1 \pm 0.8) \times 10^{-5}$	$(4.1 \pm 0.7) \times 10^{-5}$	
run#3	$(1.4 \pm 0.1) \times 10^{-4}$	$(2.9 \pm 0.6) \times 10^{-5}$	$(4.3 \pm 0.7) \times 10^{-5}$	
run#4	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^{-4}$		$(3.0 \pm 0.8) \times 10^{-5}$	$(3.1 \pm 0.7) \times 10^{-5}$
run#5	$(5.3 \pm 0.5) \times 10^{-4}$		$(6.4 \pm 1.5) \times 10^{-5}$	$(4.3 \pm 1.1) \times 10^{-5}$
run#6	$(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-4}$		$(3.5 \pm 0.9) \times 10^{-5}$	$(3.3 \pm 0.9) \times 10^{-5}$
average	2.5×10^{-4}	4.7×10^{-5}	4.3×10^{-5}	3.6×10^{-5}

表 6.3: 複数蒸留回における ^{212}Po の除去率

図 (6.3) のように、1回の蒸留では平均して 2.5×10^{-4} と大きく鉛が除去できているのがわかる。2回目以降の除去効率は悪くなり、3回の蒸留で 4.7×10^{-5} と1回目の蒸留後1回につき2分の1程度しか除去されていない。3回目以降は除去率はよくなっておらず頭打ちとなっている。1回目の蒸留以降急に除去率が悪くなっているのは、1回目の蒸留によって沸点が高いイオン性の鉛がほぼ除去され、2回目以降は、残った alkyl lead のよ

うな沸点が液体シンチレータに近く除去しづらい物質が徐々に除去されたり熱によって分解されていくものと考えることができる。3回目の蒸留以降では除去するのが難しい鉛の化合物が存在しているのか蒸留塔の分離効率がたりないという可能性が考えられるが理由ははっきりとはわかっていない。

6.1.4 テストベンチにおける連続蒸留による除去率

dodecane の連続蒸留による鉛の除去率

図(6.3)のように鉛の除去で $\sim 10^{-5}$ という成果があげられ、建設されたのがテストベンチである。今度はテストベンチの第1塔を用いて ^{220}Rn を溶かし込んだdodecaneを連続蒸留することによって ^{212}Pb の除去率を測定する。

蒸留条件は以下のようになる。

蒸留条件	
Sample	dodecane + ^{212}Pb 3.0 ℓ
Pressure	37 hPa
Theoretical plate	6
Reflux ratio	1:1 (留出液 : 還流液)

テストベンチの第1塔では、分留カラム内の還流液の流量を測定することができるので、reflux ratioも決める必要がある。分留効果に影響があるといわれる reflux ratio の決め方については蒸留にかかる時間から逆に制限をうけており、留出液は1:1ぐらいの比率で取り出すことに決めている。蒸留の注意点としては、鉛の化合物が低沸点成分に存在していると考えられるので、蒸留塔から留出液を取り出す際、最初の5分間に取り出される液体とその後の液体と別々の受け器に入れることである。実験手順に関しては小規模蒸留装置と同じ手順をとっている。

図(6.7)に実験結果を示す。縦軸が ^{212}Po のイベントレートで、横軸が最初にdodecaneに ^{220}Rn を溶かし込んでから経過した時間を示している。3回と5回蒸留は時間がかかっているの、計測開始まで時間がかかっているのがわかる。それぞれ測定された点に関数 $y = C \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + A$ でフィッティングを行った結果、

$$(7.0451 \pm 0.0536) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0012 \pm 0.0002) \quad (\text{蒸留前})$$

$$(0.0050 \pm 0.0009) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0002 \pm 0.0001) \quad (1 \text{ 回蒸留})$$

$$(0.0018 \pm 0.0005) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0003 \pm 0.0000) \quad (3 \text{ 回蒸留})$$

$$(0.0002 \pm 0.0004) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0004 \pm 0.0001) \quad (5 \text{ 回蒸留})$$

となった。これらの係数を比較することにより、dodecaneのテストベンチにおける連続蒸留によるPbの除去率は、

$$(7.1 \pm 1.3) \times 10^{-4} \quad (\text{蒸留 1 回目})$$

$$(2.6 \pm 0.8) \times 10^{-4} \quad (\text{蒸留 3 回目})$$

$$(2.5 \pm 5.1) \times 10^{-5} \quad (\text{蒸留 5 回目})$$

と見積もられた。蒸留5回目はエラーの幅が大きいので最大値をとって、Pbの連続蒸留による除去率の最高値を、

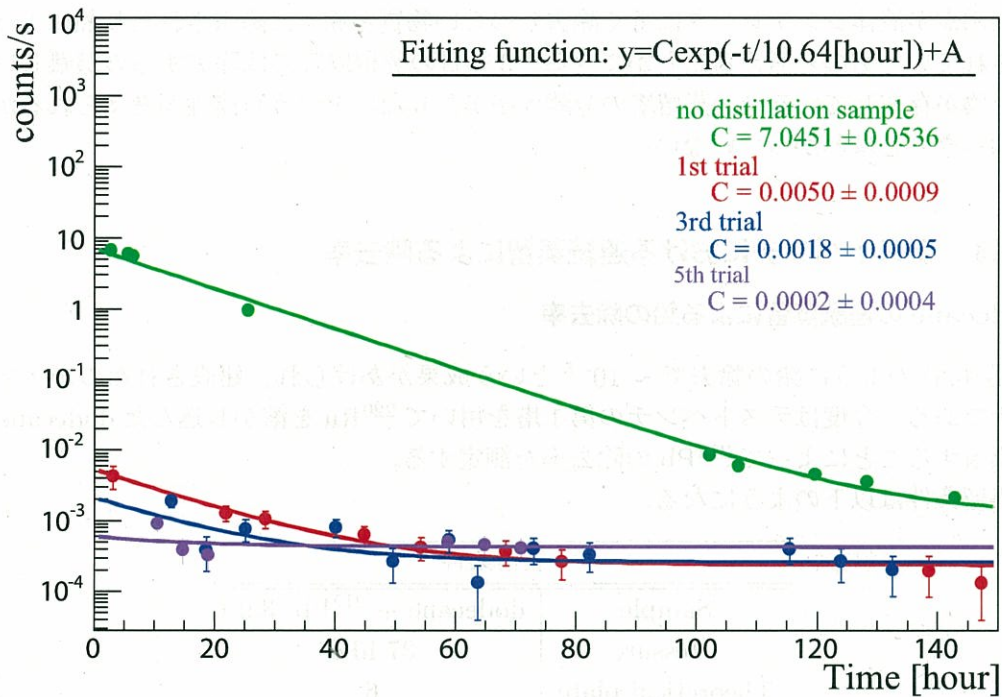


図 6.7: dodecane の蒸留前後の ^{212}Po の activity の時間推移。緑線が蒸留前、赤が 1 回の蒸留後、青が 3 回の蒸留後、紫が 5 回の蒸留後のサンプルとなる。それぞれ 0 時間の activity を比較することによって除去率が見積もられる。

7.6×10^{-5} or less
と見積もる。

pseudocumene の蒸留による鉛の除去率

次に沸点の低い pseudocumene についても蒸留による鉛の除去率を調べる。テストベンチの第 1 塔を用いて、pseudocumene に ^{220}Rn を溶かしこんで 1 回蒸留をおこないその除去率を見積もる。以下に蒸留条件を示す。

蒸留条件	
Sample	pseudocumene + ^{212}Pb 2.0 l
Pressure	37 hPa
Theoretical plate	6
Reflux ratio	1:1 (留出液 : 還流液)

今回も蒸留の際、留出液の最初の 5 分間とその後と別々の受け器にサンプルを送ることにする。また、今回は最初の 5 分間に蒸留された液体も ^{212}Po のイベントレートを測定し、蒸留液の最初の液と後の液との除去率の差も確認することにする。実験結果について、図

(6.8) に示す。

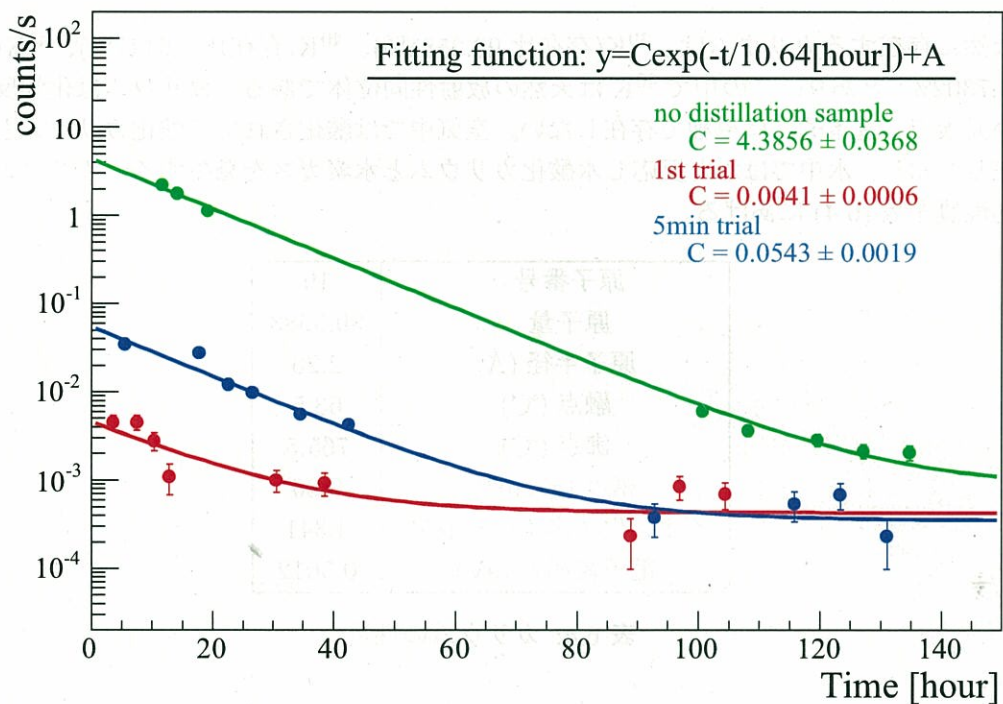


図 6.8: pseudocumene の蒸留前後の ^{212}Po の activity の時間推移。緑線が蒸留前、青線が留出液の最初の 5 分間、赤線が青線のサンプルより後に蒸留された留出液。

それぞれ測定された点に関数 $y = C \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + A$ でフィッティングを行った結果、

$$(4.3856 \pm 0.0368) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0008 \pm 0.0002) \quad (\text{蒸留前})$$

$$(0.0041 \pm 0.0006) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0004 \pm 0.0001) \quad (1 \text{ 回蒸留})$$

$$(0.0543 \pm 0.0019) \times \exp(-t/10.64[\text{hour}]) + (0.0003 \pm 0.0001) \quad (\text{最初の 5 分のサンプル})$$

上記の関数の係数を比較して、pseudocumene のテストベンチにおける一回蒸留による Pb の除去率は、

$$(9.5 \pm 1.4) \times 10^{-4} \quad (1 \text{ 回蒸留後})$$

$$(1.2 \pm 0.1) \times 10^{-2} \quad (1 \text{ 回蒸留の際、最初の 5min に取り出された pseudocumene})$$

と見積もられた。最初に取り出された液体はその後の液体に比べ、除去率が 1 オーダー以上異なることがわかった。これは、沸点の低い部分に鉛の化合物が存在しているか、または実験的になにか見落としていることがあるのか、今後確認のための実験を行う必要がある。1 回目の蒸留結果については、後のまとめの節で dodecane の除去率と比較し、考察する。

6.2 蒸留によるKの除去

カリウムの性質

天然に存在するカリウムは、 ^{39}K (存在比 93.2581%)、 ^{40}K (存在比 0.0117%)、 ^{41}K (存在比 6.7302%) とあり、この中で ^{40}K は天然の放射性同位体である。カリウムは化学反応が強い元素で、基本的には単独で存在しない。空気中では酸化されて二酸化カリウムとして存在しており、水中では水と反応し水酸化カリウムと水素ガスを発生する。カリウムの化学的性質を表(6.4)にあげる。

原子番号	19
原子量	39.0983
原子半径 (Å)	2.26
融点 (°C)	63.5
沸点 (°C)	765.5
密度 (g/cm ³)	0.86
イオン化エネルギー (eV)	4.341
電子親和力 (eV)	0.5012

表 6.4: カリウムの性質

表(6.4)よりわかるように融点が 63.5 度なので常温常圧では固体である。沸点が 765.5 度と液体シンチレータの成分の中でもっとも沸点の高い PPO の 360 度より高いので、分離は比較的容易であると考えられる。

	^{40}K [g/g]
dodecane (N12)	$< 1.2 \times 10^{-12}$
pseudocumene	$< 4.0 \times 10^{-13}$
PPO	$\sim 10^{-11}$

表 6.5: 液体シンチレータ中の各成分に含まれる ^{40}K の量。 ^{40}K は存在比 0.012%なので、測定されたカリウムの量から上記の値を計算している。

次に表(6.5)に以前測定された液体シンチレータ中に存在する ^{40}K の量について示す。PPO に関しては色々な種類が試されたが、平均的な値が 10^{-11} [g/g] であった。上記の表に表すように液体シンチレータの成分の中でもっとも PPO が ^{40}K を含んでいる。そのため、PPO を蒸留して蒸留前後でカリウムがどれだけ減っているかを確認する。以下に、実験手順、方法、結果について示す。

蒸留法による PPO からのカリウムの除去

実験手順を簡単に示すと、PPO 単体をテストベンチの第 2 塔で蒸留を行い、蒸留した PPO と蒸留していない PPO のカリウム含有量を ICP-mass spectrometer で測定し³、蒸留前後のカリウム変化量を調べる。蒸留条件は以下に示す。

蒸留条件	
Pressure	34 hPa
Temperature	227 °C(塔上部の蒸留ポイント)
Temperature	241 ~ 244°C(蒸留フラスコ内)

PPO が ICP-mass で測定されるまでの過程は以下ようになる。

- (1) サンプルの PPO の形状は粉末か塊なので、PPO を濃縮するために Pt プレートの上で 220 度で熱する。
- (2) 加熱して酸化され灰となった PPO を、 $\text{HNO}_2 + \text{HF}$ 溶剤で溶かし、液体にする。
- (3) サンプルを ICP-Mass spectrometer で測定する。

ICP-mass spectrometer で測定された結果について以下に示す。

commercial PPO (before distillation)	distilled PPO
380	14.3

(Unit = ng/g, detection limit = 10ng/g)

結果として、カリウムの除去率は $R = \frac{14.3}{380} = 3.8 \times 10^{-2}$ となった。

6.3 金属元素の除去率のまとめ

この章で得られた Pb の除去率についてまとめると、

2.5×10^{-4}	(小規模蒸留装置 : dodecane の 1 回蒸留平均値)
4.7×10^{-5}	(小規模蒸留装置 : dodecane の 3 回蒸留平均値)
4.3×10^{-5}	(小規模蒸留装置 : dodecane の 5 回蒸留平均値)
3.6×10^{-5}	(小規模蒸留装置 : dodecane の 7 回蒸留平均値)
$(7.1 \pm 1.3) \times 10^{-4}$	(テストベンチ : dodecane の 1 回蒸留)
$< 7.6 \times 10^{-5}$	(テストベンチ : dodecane の 5 回蒸留)
$(9.5 \pm 1.4) \times 10^{-4}$	(テストベンチ : pseudocumene の 1 回蒸留)

³測定は (株) 三井化学分析センターに依頼

であった。小規模蒸留装置とテストベンチの結果を比べると少しテストベンチのほうが悪いが、テストベンチは充填物の理論段数を少なくしていたことが影響している可能性がある。dodecane と pseudocumene の 1 回蒸留の Pb の除去率にそれほど大きな違いはない。よって、混合物の液体シンチレータとなっても連続蒸留を繰り返すことで、目標とする除去率は達成できると考えられる。テストベンチにおける dodecane の 5 回蒸留による除去率は、 7.60×10^{-5} 以下であり、低エネルギー太陽ニュートリノ観測のための目標値は 10^{-5} 程度とほぼ達成しているといえる。

次に、この章で得られた ^{40}K の除去率は、

3.8×10^{-2} (PPO からの除去率)

であった。 ^{40}K は、半減期 1.3×10^9 年という長い寿命から、 ^{nat}K と同じ化学的な形態を、すなわちイオンとして存在すると考えてよい。イオン性の物質の沸点は非常に高いので、液体シンチレータ成分のうち最も沸点の高い PPO の蒸留結果を評価すれば充分であるといえる。カムランドにおける ^{40}K の上限値は、3 章で記したように $^{40}\text{K} = 2.7 \times 10^{-16} \text{g/g}$ である。 ^7Be ニュートリノ観測に関して要求されるカリウム濃度は $^{40}\text{K} < 10^{-18} \text{g/g}$ in LS であるので、もし KamLAND 実機において液体シンチレータを純化した時の除去率がこの実験と同じ値であるのならば、 ^7Be ニュートリノを観測するには 2 回の蒸留で充分である。dodecane からの ^{212}Pb の除去率は 1 回の蒸留で 10^{-4} 程度であったが、これと比べるとカリウムの除去率は悪い。PPO 中のカリウムの化学形態はイオンであると想定しているが、dodecane と鉛との沸点の差のほうが PPO とカリウムの沸点の差よりも大きいことが影響している可能性がある。

第7章 結論

7.1 まとめ

蒸留装置のテストベンチを用いて、液体シンチレータの蒸留を行い得られた放射性不純物の除去率は、

$$^{85}\text{Kr} : < 1.3 \times 10^{-5}, \quad ^{222}\text{Rn} : \sim 10^{-3}, \quad ^{210}\text{Pb} : < 7.6 \times 10^{-5}, \quad ^{40}\text{K} : 3.8 \times 10^{-2}$$

であった。この結果を用いて、図(3.1)のような現在の KamLAND の低エネルギー領域のスペクトルにたいして上記の除去率の上限值をあてはめると、図(7.1)になる。

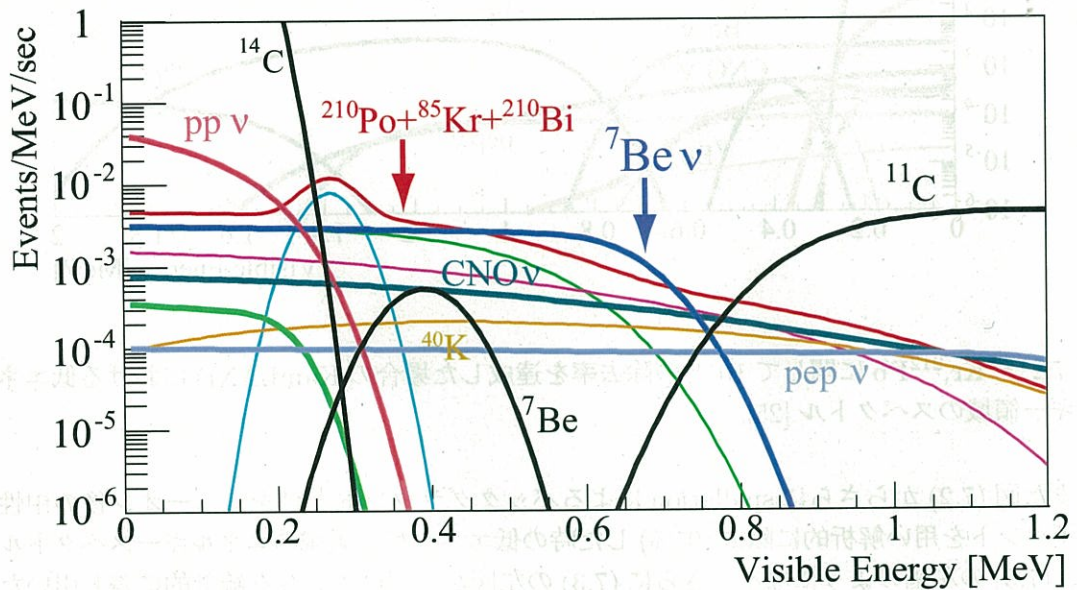


図 7.1: KamLAND において液体シンチレータを純化して本論文で得られた除去率を達成した場合、予想される低エネルギー領域のスペクトル [25]。

図(7.1)より 0.5MeV~0.8MeV の領域において、予想される ^7Be ニュートリノとその他のバックグラウンドのイベント数を表(7.1)に見積もった。 ^7Be ニュートリノイベントの事象数はその他のバックグラウンドイベントの総数よりも多い。このように、現在の除去結果においても ^7Be ニュートリノが観測されているのがわかる。そして、理想的に ^{85}Kr , ^{210}Pb の除去率を 1.0×10^{-6} 、 ^{40}K の除去率を $< 1.0 \times 10^{-4}$ と仮定して、上記の図と同様に図(3.1)にあてはめると、以下のようなになる。

	Event rate [events/day/fiducial]
${}^7\text{Be}$ ν (no oscillation)	34.5
${}^{214}\text{Bi}$	10.5
${}^{85}\text{Kr}$	9.9
${}^{40}\text{K}$	4.4

表 7.1: 液体シンチレータ純化後の 0.5MeV~0.8MeV 領域で予想されるイベントレート

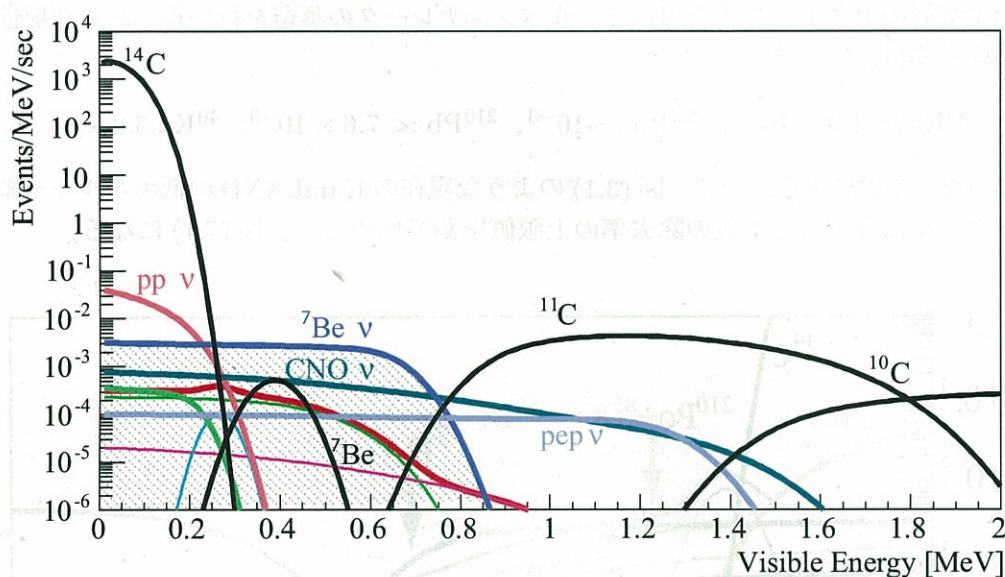


図 7.2: ${}^{85}\text{Kr}$, ${}^{212}\text{Pb}$ に関して 10^{-6} の除去率を達成した場合の KamLAND における低エネルギー領域のスペクトル [25]。

また図 (7.2) からさらに spallation によるバックグラウンド ${}^{11}\text{C}$ をミューオン後の中性子イベントを用い解析的に除去 (95%) した時の低エネルギー領域のエネルギースペクトルは、(7.3) の左図のようになる。さらに (7.3) の左図から ${}^{11}\text{C}$ の寄与を統計的に差し引いた場合のエネルギースペクトルは (7.3) の右図のようになる。pep、CNO サイクルのニュートリノが支配的になり観測できているといえる。

このように本論文では、KamLAND において蒸留法を用いて液体シンチレータを純化することによって ${}^7\text{Be}$, pep 太陽ニュートリノ観測、CNO サイクルの太陽ニュートリノ観測が可能であることを示した。

7.2 将来計画

現在 KamLAND では、神岡の KamLAND エリアに新しい純化装置エリアを確保しており、今年度、大規模蒸留装置を建設することが決まっている。大規模蒸留装置の建設ま

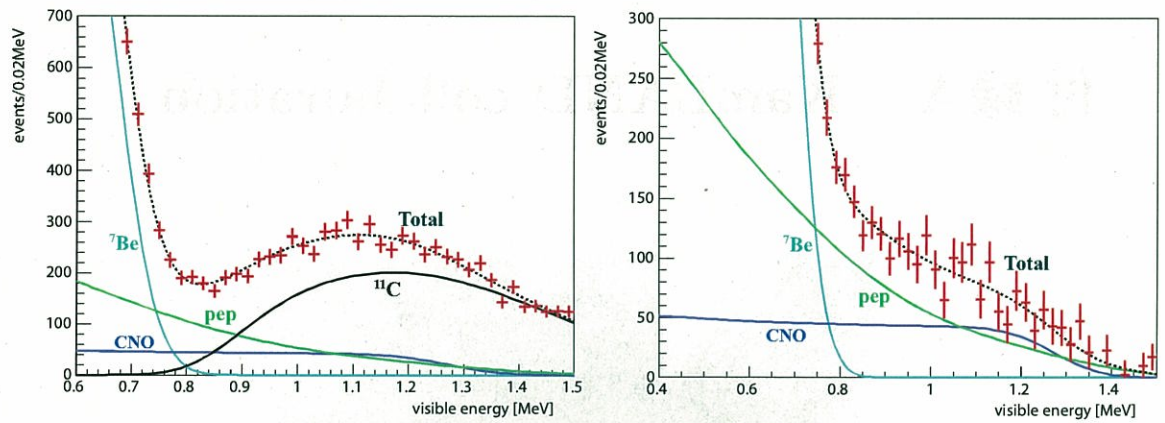


図 7.3: 左が図 (7.2) から ${}^{11}\text{C}$ を解析的に 95%除去した時のエネルギースペクトル。右が左のグラフから ${}^{11}\text{C}$ の寄与を統計的に差し引いた場合のエネルギースペクトル。黒い点線は全体のスペクトルで、エラーバー付きの赤い点は乱数を用いて黒い点線上にプロットしたもの。測定期間は3年で、 ${}^{11}\text{C}$ 除去の際の deadtime が測定時間のうち 50%生じたものとしている [25]。

で、確認すべきこととして

- 蒸留前後の液体シンチレータの性能評価 (熱による変質について)
 - 蒸留後に絶対値として目標値を達成しているかを確認するための高感度ラドン、クリプトン検出器の開発
- などがある。

付録A KamLAND collaboration



T.Ebihara,¹ S.Enomoto,¹ K.Furuno,¹ K.Ichimura,¹ H.Ikeda,¹ K.Inoue,¹ Y.Kibe,¹ Y.Kishimoto,¹ M.Koga,¹ Y.Koseki,¹ Y.Konno,¹ T.Mitsui,¹ K.Nakajima,¹ K.H.Nakajima,¹ Y.Nakamura,¹ M.Ogawa,¹ K.Owada,¹ I.Shimizu,¹ J.Shirai,¹ F.Suekane,¹ A.Suzuki,¹ S.Takeuchi,¹ K.Tamae,¹ H.Watanabe,¹ S.Yoshida,¹ J.Busenitz,² T.Classen,² Z.Djurcic,² C.Grant,² G.Keefer,² D.Leonard,² D.McKee,² A.Piepkke,² B.E.Berger,³ Y.D.Chan,³ M.P.Decowski,³ D.A.Dwyer,³ S.J.Freedman,³ Y.Fu,³ B.K.Fujikawa,³ J.Goldman,³ F.Gray,³ K.M.Heeger,³ K.T.Lesko,³ K.-B.Luk,³ H.Murayama,³ A.W.P.Poon,³ H.M.Steiner,³ L.A.Winslow,³ C.Mauger,⁴ R.D.McKeown,⁴ P.Vogel,⁴ Chao Zhang,⁴ C.E.Lane,⁵ T.Miletic,⁵ G.A.Horton-Smith,⁶ P.W.Gorham,⁷ G.Guillian,⁷ J.G.Learned,⁷ J.Maricic,⁷ S.Matsuno,⁷ S.Pakvasa,⁷ S.Dazeley,⁸ S.Hatakeyama,⁸ B.D.Dieterle,⁹ M.DiMauro,⁹ C.Gregory,⁹ G.Gratta,¹⁰ K.Ishii,¹⁰ N.Tolich,¹⁰ M.Batygov,¹¹ W.Bugg,¹¹ Y.Efremenko,¹¹ Y.Kamyshkov,¹¹ A.Kozlov,¹¹ C.R.Gould,¹² H.J.Karwowski,¹² D.M.Markoff,¹² R.M.Rohm,¹² W.Tornow,¹² R.Wendell,¹² A.R.Young,¹² M.-J.Chen,¹³ Y.-F.Wang,¹³ and F.Piquemal¹⁴

¹Research Center for Neutrino Science, Tohoku University, Sendai 980 – 8578, Japan

²Department of Physics and Astronomy, University of Alabama, Tuscaloosa, Alabama 35487, USA

³Physics Department, University of California at Berkeley and

Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA

⁴W.K.Kellogg Radiation Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California 91125, USA

⁵Physics Department, Drexel University, Philadelphia, Pennsylvania 19104, USA

⁶Kansas State University, 116 Cardwell, Manhattan KS66506, USA

⁷Department of Physics and Astronomy, University of Hawaii at Manoa, Honolulu, Hawaii 96822, USA

⁸Department of Physics and Astronomy, Louisiana State University, Baton Rouge, Louisiana 70803, USA

⁹Physics Department, University of New Mexico, Albuquerque, New Mexico 87131, USA

¹⁰Physics Department, Stanford University, Stanford, California 94305, USA

¹¹Department of Physics and Astronomy, University of Tennessee, Knoxville, Tennessee 37996, USA

¹²Triangle Universities Nuclear Laboratory, Durham, North Carolina 27708, USA and Physics Departments at Duke University, North Carolina State University, and the University of North Carolina at Chapel Hill

¹³Institute of High Energy Physics, Beijing 100039, People's Republic of China

¹⁴CEN Bordeaux-Gradignan, IN2P3-CNRS and University Bordeaux I, F-33175 Gradignan Cedex, France

付録B U,Th崩壊系列



図 B.1: ウラン系列の崩壊系列

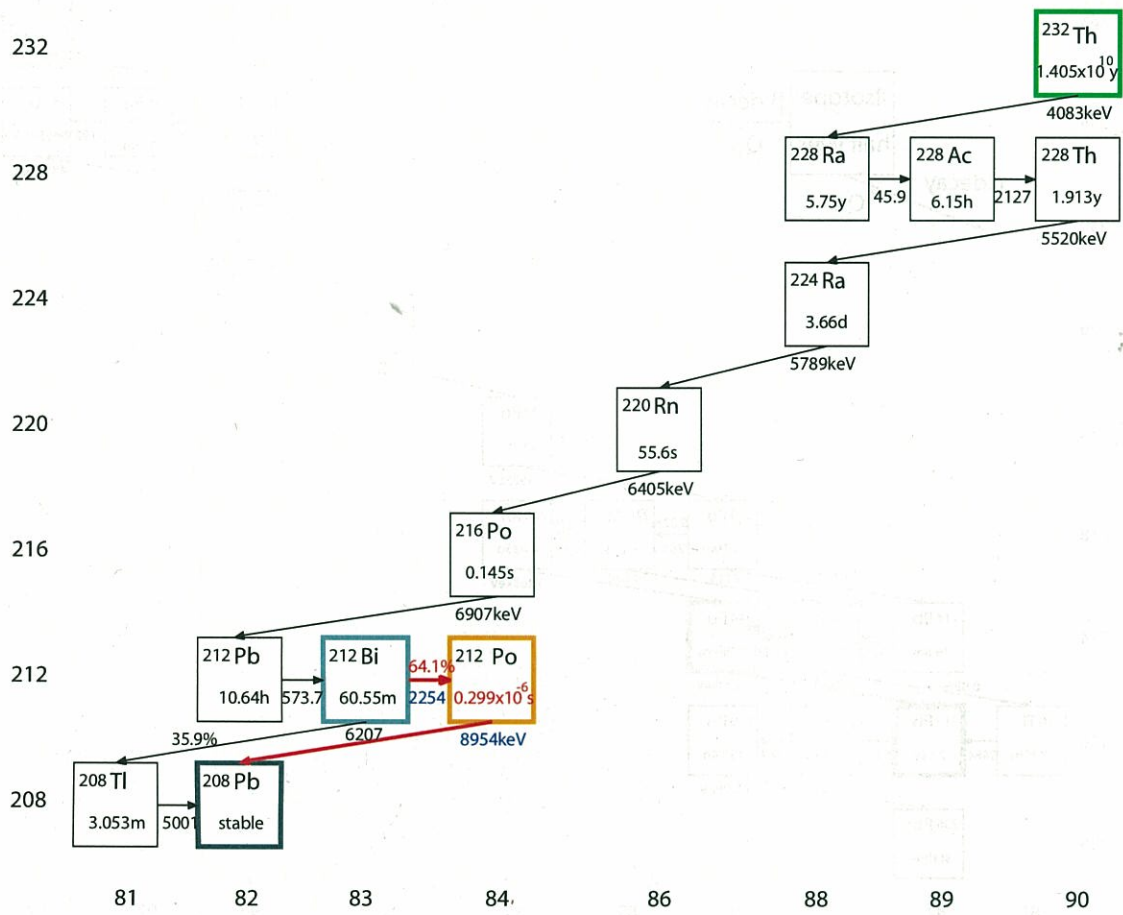


図 B.2: トリウム系列の崩壊系列

付録C 放射平衡

^{214}Po が崩壊してできる α 線を遅延同時計測で測定する際に、親核の ^{222}Rn から ^{214}Po までが放射平衡の状態になっている必要がある。ここでは、実際に ^{222}Rn から ^{210}Pb がどれくらいの時間で放射平衡に達するのか確認する。

放射性核の壊変は、核種が N 個存在するときの単位時間の放射能 (壊変率) は、

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (\text{C.1})$$

となる。(λ は壊変定数 (decay constant)) 式 (C.1) を積分すると、式 (C.2) が得られる。

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{C.2})$$

ここで N_0 は $t=0$ における N の値である。さらに式 (C.2) を変形して、放射能が半分になる時間と壊変定数との関係を求めると、

$$T_{\frac{1}{2}} = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{N}{N/2} = \frac{0.693}{\lambda} \quad (\text{C.3})$$

となる。表 C.1 に $^{222}\text{Rn} \sim ^{210}\text{Pb}$ の半減期と壊変定数を示す。(ただし分岐比の小さい ^{218}At , ^{210}Tl は除く。)

元素	半減期 $T_{\frac{1}{2}}$	壊変定数 λ ($\frac{\ln 2}{T_{1/2}[\text{hour}]}$)
^{222}Rn	3.824 day	7.551×10^{-3}
^{218}Po	3.10 min	13.41
^{214}Pb	26.8 min	1.552
^{214}Bi	19.9 min	2.089
^{214}Po	164.3 μsec	1.519×10^7

表 C.1: $^{222}\text{Rn} \sim ^{210}\text{Pb}$ 間の半減期と壊変定数

上記のように一連の核種が壊変系列をつくる場合、各々の核種の原子数を $N_1, N_2, N_3, \dots, N_n$ 、壊変定数を $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \dots, \lambda_n$ とし、 $t=0$ における原子数を親核を N_1^0 とし、それ以外の娘核は初期状態として 0 個だったと仮定すると、以下に示す Bateman の式を用いること

ができる。

$$\begin{aligned}
 N_n &= C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t} \\
 C_1 &= \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_1)} N_1^0 \\
 C_2 &= \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \dots (\lambda_n - \lambda_2)} N_1^0 \\
 C_m &= \frac{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_m)(\lambda_2 - \lambda_m) \dots (\lambda_{n-1} - \lambda_m)} N_1^0
 \end{aligned}
 \tag{C.4}$$

式(C.4)に、表(C.1)の λ を代入すると、それぞれの核種の原子数である N_1, N_2, N_3, N_4, N_5 がもとまる。それぞれの核種の放射能と時間推移を示す $A_n[Bq] = \lambda_n N_n(t)$ を図C.1に示す($N_1^0 = 1000$ とした。)。 ^{214}Po の半減期が非常に短いので ^{214}Bi と ^{214}Po の壊変率がほぼ重なっている。図が示すように放射平衡まで3~4時間程度かかる。

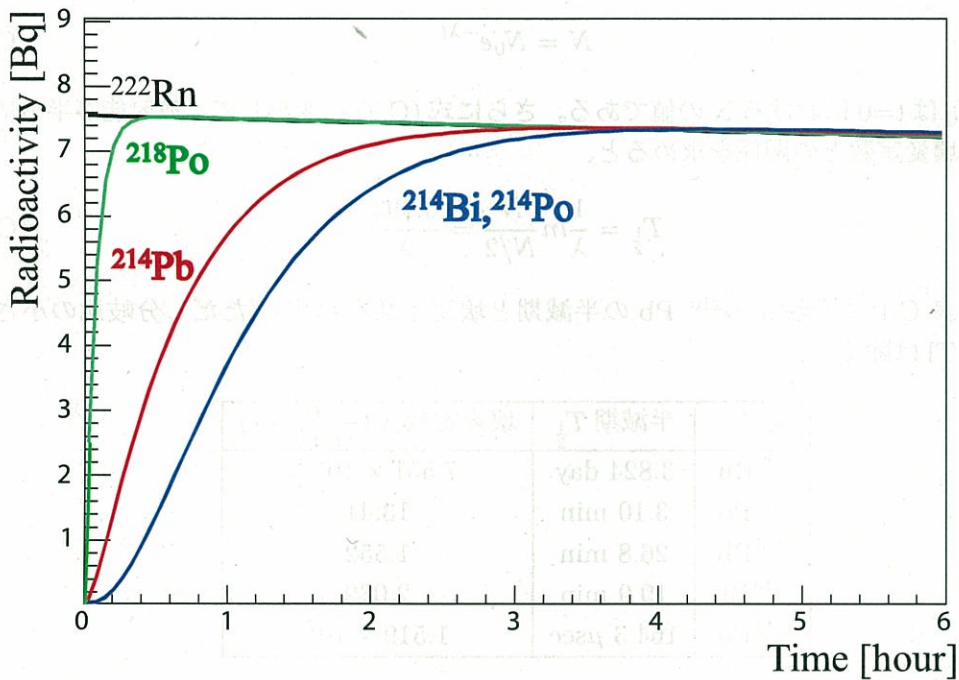


図 C.1: 初期条件として親核の ^{222}Rn のみが1000個存在するとしたときの、親核と娘核の放射能の時間推移。(ただし、 $^{222}\text{Rn} \sim ^{210}\text{Pb}$ までの間の核で、分岐比の小さい ^{218}At と ^{210}Tl は除いている。)

参考文献

- [1] Aleksankin V.G. *et al.* : Handbook, Beta and Anti-neutrino Radiation of Radioactive Nuclei Edited by Rubzov P.M., Moscow, Energoatomizdat, 1989
- [2] John N. Bahcall : Neutrino Astrophysics, Cambridge University Press, 1988
- [3] John N. Bahcall, Aldo M. Serenelli and Sarbani Basu :
New solar opacities, abundances, helioseismology, and neutrino fluxes, 2005
- [4] M. Fukugita, A. Suzuki (Eds.) : Physics and Astrophysics of Neutrinos, 1994
- [5] T. Araki *et al.* (KamLAND Collaboration): PRL hep-ex/0406035
- [6] IUPAC *et al.* The Solubility of Gases in Liquids (Solubility Data Series vol2.)
- [7] Masaaki SAITO *et al.* Determination of Radon Solubilities to 1,2-Dimethylbenzene, 1,3-Dimethylbenzene, 1,4-Dimethylbenzene, 1,3,5-Trimethylbenzene, 1,2,4-Trimethylbenzene and 1-Isopropyl-4-methylbenzene, 1999
- [8] 高原 文郎著 宇宙物理学 朝倉書店 1999
- [9] 斉尾 英行著 星の進化 培風館 1992
- [10] 尾崎 洋二著 宇宙科学入門 東京大学出版会 1996
- [11] 市村 晃一, 修士論文, 東北大学 (平成 16 年)
- [12] 津田 裕輔, 修士論文, 東北大学 (平成 16 年)
- [13] 荒木 孝之, 修士論文, 東北大学 (平成 16 年)
- [14] 前田 達郎, 修士論文, 東北大学 (平成 15 年)
- [15] 満田 史織, 修士論文, 新潟大学 (平成 13 年)
- [16] 日本化学会編 実験化学講座 基礎編 丸善 1991
- [17] 日本化学会編 化学便覧 丸善 1993
- [18] 化学大辞典 東京化学同人 1989
- [19] 鈴木 厚人 極低放射能環境下におけるニュートリノ科学の研究 2004
- [20] 国際化学物質安全カード <http://www.nihs.go.jp/ICSC>

- [21] john bahcall home page -Institute for Advanced Study- <http://www.sns.ias.edu/jnb>
- [22] Properties of stars <http://www.jb.man.ac.uk/distance/life/sample/stars>
- [23] Neutrino Physics <http://hitoshi.berkeley.edu/neutrino>
- [24] Super Kamiokande home page <http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/sk/index.html>
- [25] Made by I.Shimizu for this thesis,2006
- [26] Competition between the PP Chain and the CNO Cycle
<http://csep10.phys.utk.edu/astr162/lect/energy/cno-pp.html>