

修士論文

電子型反ニュートリノの方向検出に向けた リチウム含有液体シンチレータの開発

東北大学大学院理学研究科
物理学専攻
渡辺 寛子

平成 20 年

概要

液体シンチレーション法は、低エネルギー領域の観測に特化している反面、水チェレンコフ法のようにニュートリノ事象の到来方向測定によりその発生源を探ることが出来ない。しかし低エネルギーニュートリノの到来方向検出は様々な意義を持ち、検出器の開発が期待されている。

反ニュートリノの検出は逆 β 崩壊反応 ($\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$) を利用し、先発信号の陽電子と、熱中性子が平均 $200\mu\text{s}$ 後陽電子に捕獲される際に発生する 2.2MeV の γ 線を後発信号として遅延同時計測する。低エネルギーの逆 β 崩壊反応において先発信号の陽子はほぼ等方的に放出され、中性子の反跳は反ニュートリノの到来方向の情報を保持している (3.0MeV において反跳角は 35° 以下)。従って陽電子発生点・中性子吸収点を結ぶベクトルと反ニュートリノの到来方向に相関があるので、この二点を精度良く測定する事によって反ニュートリノの到来方向測定が可能となる。しかし現存する液体シンチレータでは放出された中性子が十数 cm 拡散し位置情報がぼやけ、更に 2.2MeV の γ 線が約 40cm も移動する為に中性子吸収点が特定出来ない。この問題の解決策として中性子捕獲断面積が 940barn と陽子の 0.3barn に比べて大きく、液体シンチレータ中を長距離移動出来ない α 線を放出する原子核を ${}^6\text{Li}$ 液体シンチレータに導入することを考えた。

本研究では独自の方法でリチウム含有液体シンチレータの作成方法を開発し、透過率、発光量といった基本的性能の評価、長期安定性の確認、更に後発信号となる α 線のクエンチ効果の測定を行った。また現在計画中である小型検出器による原子炉反ニュートリノの到来方向測定への応用に向け、原子炉反ニュートリノのエネルギー領域におけるリチウム含有液体シンチレータ中の反応の見積もりをモンテカルロシミュレーションにより行った。

目次

第1章 序論	1
1.1 ニュートリノ	1
1.1.1 物質の構成粒子	1
1.1.2 歴史的背景	2
1.2 ニュートリノ振動	3
1.3 太陽ニュートリノ問題	4
1.4 二重ベータ崩壊	6
1.4.1 ニュートリノの質量	7
1.4.2 実験方法	8
第2章 方向検出の物理的目的とその応用	10
2.1 地球反ニュートリノ	10
2.1.1 地球反ニュートリノの地球理解への利用	11
2.1.2 地球反ニュートリノ検出実験	11
2.1.3 到来方向測定の実用	14
2.2 超新星反ニュートリノ	16
2.2.1 超新星爆発の仮定	16
2.2.2 到来方向測定の実用	18
2.3 原子炉反ニュートリノ	20
2.3.1 原子炉反ニュートリノ検出実験	22
2.3.2 到来方向測定の実用	32
第3章 検出原理	33
3.1 液体シンチレータによる方向検出	33
3.1.1 液体シンチレータ	33
3.1.2 方向検出の原理	36
3.1.3 逆 β 崩壊の角度分布のエネルギー依存性	40
3.2 イメージング検出器	44
3.2.1 SCITIC	44
3.2.2 プロトタイプイメージング検出器	45
第4章 シミュレーションによる性能評価	46
4.1 イベントリストの作成	46
4.2 シミュレーション	48
4.2.1 陽電子の移動距離	48
4.2.2 中性子捕獲原子核の選択	48

4.2.3	リチウム含有液体シンチレータの性能評価	52
第 5 章	リチウム含有液体シンチレータの作成	54
5.1	リチウム含有液体シンチレータの使用例	54
5.1.1	NE320	54
5.1.2	Bugey 実験	55
5.2	リチウムの性質	56
5.3	開発目標の設定	57
5.3.1	リチウム含有量の決定	57
5.3.2	物理的性質	58
5.4	リチウム含有液体シンチレータの作成 (1) ～ 有機溶媒への溶解	59
5.4.1	リチウムアセチルアセトナート	60
5.4.2	安息香酸リチウム	62
5.4.3	まとめ	65
5.5	リチウム含有液体シンチレータの作成 (2) ～ 界面活性剤の使用	66
5.5.1	リチウム化合物の選択	66
5.5.2	飽和臭化リチウム水溶液の作成	67
5.5.3	シンチレータカクテル	68
5.5.4	界面活性剤の選択と混合比の最適化	70
5.6	作成方法のまとめ	74
第 6 章	性能評価	75
6.1	透過率	75
6.2	発光量	78
6.2.1	測定原理	78
6.2.2	測定結果	81
6.3	長期安定性	84
6.4	α クエンチ	86
第 7 章	結論	89
7.1	まとめ	89
7.2	今後の展望	90
付 録 A	プロトタイプ検出器の作成に向けたシミュレーション	92
A.1	検出器の設計	92
A.1.1	イメージング検出器の要請	92
A.1.2	イベント数の見積もり	93
A.2	シミュレーション	94
A.2.1	イベント発生点と発生方向の設定	94
A.2.2	結果と考察	95
付 録 B	^{238}U、^{232}Th、^{235}U 崩壊系列	96

目 次

1.1	pp チェーン	4
1.2	CNO サイクル	5
1.3	太陽ニュートリノのエネルギースペクトル	6
1.4	二重ベータ崩壊の 2 つの過程	6
1.5	二重ベータ崩壊観測実験によるニュートリノの質量の測定値とニュートリノの質量パターンの関係	8
1.6	二重ベータ崩壊の電子のエネルギースペクトル	8
1.7	各実験の使用原子核と到達感度	9
2.1	地球の内部構造	10
2.2	KamLAND 検出器	12
2.3	KamLAND に飛来する地球反ニュートリノのフラックスとエネルギー スペクトル	13
2.4	KamLAND による地球反ニュートリノの測定結果	13
2.5	HANOHANO の検出器	14
2.6	EARTH 検出器の ^{10}B 含有液体シンチレータの性質	15
2.7	シミュレーションによる反応確率の角度依存性の見積もりと EARTH 実験のセル型検出器の概要	16
2.8	弾性散乱と逆 β 崩壊の反応断面積	18
2.9	ニュートリノの到来方向に対する角度分布	19
2.10	主な核種から生成される反ニュートリノのエネルギー分布	21
2.11	観測される反ニュートリノのエネルギー分布	21
2.12	各実験の原子炉からの距離に対する反ニュートリノの観測事象と予測 事象の比の測定結果	22
2.13	$E/L \sim \Delta m_{13}^2/2\pi$ の場所での 3 種のニュートリノの振動確率	23
2.14	DoubleCHOOZ 実験の検出器	24
2.15	DoubleCHOOZ 実験の到達精度	24
2.16	日本の主な原子炉の位置とニュートリノイベントの KamLAND からの 距離による分布	25
2.17	反電子型ニュートリノの L/E 分布 (2004 年)	27
2.18	原子炉ニュートリノ振動パラメータの測定 (2004 年)	27
2.19	観測した反電子ニュートリノ事象のエネルギー分布	28
2.20	原子炉ニュートリノ振動パラメータの測定 (2008 年)	29
2.21	反電子型ニュートリノの L/E 分布 (2008 年)	29
2.22	SONGS の検出器設置場所	30

2.23 SONGS の測定結果	31
2.24 ^{235}U と ^{239}Pu の放出する反ニュートリノのエネルギースペクトルと SONGS での観測結果	31
2.25 反ニュートリノ到来方向に対する中性子吸収点の角度分布	32
3.1 溶媒の吸収スペクトルと溶質の発光スペクトルの波長関係	34
3.2 主な溶媒の分子構造	34
3.3 チェレンコフ光の進行方向	36
3.4 SK-I による測定事象の太陽方向角度分布	37
3.5 液体シンチレータ中の反応過程	38
3.6 リチウム含有液体シンチレータ中の反応過程	39
3.7 逆 β 崩壊の全散乱断面積と発生陽電子の平均角度分布	41
3.8 逆 β 崩壊反応の概念図	42
3.9 ニュートリノのエネルギーと陽電子、中性子の反跳角の相関	43
3.10 ニュートリノのエネルギーと中性子の運動エネルギー、反跳角の相関	43
3.11 SCITIC	44
3.12 SCITIC を用いた実験結果	44
3.13 プロトタイプイメージング検出器	45
3.14 CCD カメラによるミュオントラックとコバルト線源の撮像	45
4.1 $E_{\bar{\nu}_e}=5.0\text{MeV}$ のときの反応断面積の陽電子放出角による分布	46
4.2 原子炉反ニュートリノのエネルギー分布	47
4.3 原子炉反ニュートリノのエネルギー分布から求めた中性子の運動エネ ルギーと反跳角の相関	47
4.4 陽電子の移動距離	48
4.5 中性子捕獲点までの距離 R_n	49
4.6 再構成反応点までの距離 R	49
4.7 中性子散乱・捕獲点分布	50
4.8 反ニュートリノ到来方向に対する中性子吸収点の角度分布	51
4.9 角度分解能 $\Delta\theta$ の定義	51
4.10 先発信号・後発信号の時間間隔のリチウム濃度による変化	52
4.11 角度分解能のリチウム濃度による変化	53
5.1 Bugey 実験検出器	55
5.2 リチウム含有量の決定	58
5.3 リチウムアセチルアセトナートの形状と構造式	60
5.4 リチウムアセチルアセトナートの有機溶媒への溶解結果	61
5.5 安息香酸リチウムの形状と構造式	62
5.6 安息香酸リチウムの有機溶媒への溶解結果	63
5.7 安息香酸リチウムのエチレングリコールへの溶解	64
5.8 臭化リチウム一水和物の形状	67
5.9 飽和臭化リチウム水溶液の作成	67
5.10 Scintisol 500 の温度と含水率による状態の変化	68

5.11	臭化リチウム水溶液のシンチレータカクテルへの溶解	69
5.12	界面活性剤の種類と構造式	71
5.13	界面活性剤と有機溶媒の混合比の最適化	72
6.1	吸光光度計	76
6.2	界面活性剤と水溶液の透過率への影響	77
6.3	γ 線と炭素の反応断面積	78
6.4	^{137}Cs の崩壊図	78
6.5	コンプトン効果の概念図	79
6.6	発光量測定装置と後方散乱イベントの概念図	80
6.7	後方散乱スペクトル	80
6.8	有機溶媒直接溶解法で作成したリチウム含有液体シンチレータのコン プトンエッジスペクトル	81
6.9	含水率と発光量の関係	83
6.10	発光量の時間変化	85
6.11	^{222}Rn のサンプルへの溶解	86
6.12	^{222}Rn から ^{210}Pb までの崩壊図	86
6.13	α クエンチ測定結果	87
6.14	先発信号と後発信号の時間差	88
A.1	テストベンチ検出器の概要	93
A.2	イベント発生位置、発生方向の設定	94
A.3	シミュレーション結果	95
B.1	ウラン系列の崩壊系列	96
B.2	トリウム系列の崩壊系列	97
B.3	アクチニウム系列の崩壊系列	98

表 目 次

1.1	素粒子の分類	2
1.2	ニュートリノ振動における位相 ($\Delta m^2 L/4E$) $\simeq \pi/2$ の領域	4
3.1	中性子捕獲原子核の反応断面積	39
4.1	角度分解能	51
5.1	NE320 と NE224 の性能比較	54
5.2	リチウムの性質	56
5.3	リチウム含有液体シンチレータの目標性能	58
5.4	リチウムアセチルアセトナートの性質	60
5.5	リチウムアセチルアセトナートの有機溶媒への溶解結果	61
5.6	安息香酸リチウム	62
5.7	安息香酸リチウムの有機溶媒への溶解結果	63
5.8	エチレングリコールとプソイドクメンの性質の比較	65
5.9	自作液体シンチレータと目標値の比較	65
5.10	リチウム化合物の溶解度	66
5.11	シンチレータカクテルの実験結果	69
5.12	各界面活性剤の含水実験結果	72
5.13	自作液体シンチレータと目標値の比較	73
5.14	自作液体シンチレータと目標値の比較	74
6.1	減衰長 (有機溶媒直接溶解法)	76
6.2	減衰長 (界面活性剤使用法)	77
6.3	発光量 (界面活性剤使用法)	82
6.4	長期安定性	85
7.1	自作液体シンチレータの物質と混合比	89
7.2	自作液体シンチレータと目標値の比較	89
A.1	リチウム含有液体シンチレータの構成	92
A.2	KamLAND 検出器とプロトタイプ検出器の比較	93
A.3	捕獲割合	95

第1章 序論

1930年にパウリ (W.Pauli) によってニュートリノの存在が予言されて以来、現在まで様々な検出の検出方法が開発されてきた。1956年にライネス (F.Reines) とコーワン (C.Cowan) によって液体シンチレータによる原子炉からの反ニュートリノの初検出が成し遂げられるまで、実に26年の時間を要したのはニュートリノが弱い相互作用しかせず、検出が非常に困難であることを物語っている。

ニュートリノの初検出から半世紀以上たった現在でも、低エネルギー領域の反ニュートリノに対してその到来方向の情報を得ることが出来る液体シンチレータは存在しない。そこで本研究は長年その開発が待ち望まれている、反ニュートリノの到来方向検出を目指した液体シンチレータの開発を目指す。

以下、本論文の構成についてまとめる。

第1章は導入としてニュートリノの主な性質についてまとめる。

第2章は反ニュートリノの到来方向測定が可能な検出器をどのような研究に応用できるのかを、これまでの実験結果を踏まえた上で述べる。

第3章は検出原理について。

第4章は方向検出可能な液体シンチレータの性能をシミュレーションを用いて見積もる。

第5章は実際にどのようにして液体シンチレータを開発したのか、その方法について述べる。

第6章は作成した液体シンチレータの詳しい性能評価を行い、検出器として実装可能かどうか様々な観点から考える。

第7章で本研究の成果のまとめを行い、これからの課題や問題点を述べる。

1.1 ニュートリノ

1.1.1 物質の構成粒子

物質を構成する粒子にはクォークとレプトンがありそれぞれ3世代に分類出来る (表1.1)。電子、ミューオン、タウの3種類のレプトンは質量を除けば全く同じ性質を持っており、それぞれの反応率等も質量値を置き換えるだけで正確に再現出来る。本研究で逆 β 崩壊を利用して測定を目指している反電子型ニュートリノは電子型ニュートリノの反粒子である。

	第一世代	第二世代	第三世代
クォーク	u (up)	c (charm)	t (top)
	d (down)	s (strange)	b (bottom)
レプトン	ν_e	ν_μ	ν_τ
	e	μ	τ

表 1.1: 素粒子の分類

1.1.2 歴史的背景

1920 年代、 β 崩壊は原子核の中で中性子が陽子に崩壊する際に電子を放出する現象で、電子は飛び飛びの一定値のエネルギーを持つと考えられていた。しかし β 崩壊において電子のエネルギーが連続分布していることが確かめられ、エネルギーと角運動量の保存則が成立しないという問題に直面していた。そこでパウリがスピン 1/2 で質量が非常に軽く、電荷を帯びない未知の粒子の存在を予言し、ニュートリノと名付けた。1930 年のことであった。更に 1934 年には、フェルミによって β 崩壊は中性子が陽子に崩壊する際に電子とニュートリノを放出する反応であるという解釈がなされた。

実際に検出が行われたのは、26 年後の 1956 年にライネスとコーワンらによって原子炉反ニュートリノのが最初であった。実験はアメリカのカロライナ州にあるサバンナ原子炉の近傍に、塩化カドミウムを含む水の層を液体シンチレータで挟んだ構造の検出器を設置して観測した。反ニュートリノと陽子の反応で放出された陽電子を先発信号、中性子がカドミウムに捕獲されて放出する 3~4 個の γ 線を後発信号として同時遅延計測を行った。この手法は今日でも用いられている大変画期的な方法であった。

更に 1962 年にレーダーマン (L.Lederman)、シュウォーツ (M.Schwartz)、スタインバーガー (J.Steinberger) によってミュー型ニュートリノが発見され、2000 年にタウ型ニュートリノの存在が実験的に確かめられたことにより、3 世代のニュートリノ全てが確認された。

長きに渡って大前提となっていた標準理論ではニュートリノは質量は持たないとされていたが、質量が無ければ起こらないニュートリノ振動が発生していることが観測されその精密測定が急がれている。

1.2 ニュートリノ振動

三種類のニュートリノ (ν_e, ν_μ, ν_τ) は弱い相互作用で荷電レプトンと対になって生成される。これを弱相互作用と言い一般に質量固有状態と同一であるとは限らず、混合である場合はフレーバーの固有状態 (ν_α) は質量固有状態 (ν_j) の重ね合わせとなる。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_j U_{\alpha j} |\nu_j\rangle \quad (1.1)$$

この場合生成されたニュートリノが伝搬するとき各質量固有状態は別々の時間発展をするので、混合比が変わり別のフレーバーの状態が混入する。これをニュートリノ振動と呼ぶ。 ν_j は安定であるとし質量が小さいことを考慮すると、フレーバーの時間発展は

$$|\nu_\alpha(t)\rangle = \sum_j U_{\alpha j} |\nu_j\rangle e^{-iE_j t}, \quad E_j = \sqrt{p^2 + m_j^2} \simeq p + \frac{m_j^2}{2E} \quad (1.2)$$

と表される。簡単の為に2世代とすると、独立な混合行列要素はただ1つのみとなるので、混合角 θ を用いて次のように表せる。

$$\begin{aligned} |\nu_e\rangle &= \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta |\nu_2\rangle \\ |\nu_\mu\rangle &= -\sin\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle \end{aligned} \quad (1.3)$$

従って $t=0$ で ν_e であったものが時刻 t で ν_μ に変化する確率は

$$\begin{aligned} P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu; t) &= |\langle \nu_\mu(0) | \nu_\mu(t) \rangle|^2 = |\sin\theta \cos\theta (1 - e^{-i(E_1 - E_2)t})|^2 \\ &\simeq \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{\Delta m^2}{4E} L \right) = \sin^2 2\theta \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m^2 (\text{eV})^2}{E (\text{GeV})} L (\text{km}) \right) \end{aligned} \quad (1.4)$$

$$\Delta m^2 = m_2^2 - m_1^2, \quad L = ct \quad (1.5)$$

ν_e が生き残る確率は

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_e; t) = 1 - P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu; t) \quad (1.6)$$

波長 λ は

$$\lambda = \frac{4\pi E}{\Delta m^2} = \frac{2.5 E (\text{GeV})}{\Delta m^2 (\text{eV})^2} \quad (1.7)$$

と求められる。

振動が顕著である領域は $\sin^2 (\Delta m^2 L / 4E) = 1$ つまり $\Delta m^2 L / 4E = \pi/2$ で与えられるので、 E/L を適切に選ぶことで広い範囲の Δm^2 の探索が可能になる。表 1.2 にニュートリノ源の違いによる質量領域を示す。実験的には始めに ν_e ビームを作り、下流で他のニュートリノ ν_μ が現れるかを測定する方法と、2カ所以上の地点で測定し欠損があるかを測定する方法が考えられる。技術的には前者の方が容易であるが、振動確率が混合行列要素を含むので振動が存在しても混合率が小さく、測定限界以下になる可能性がある。一方、後者は技術的な困難さを解決出来れば混合行列の大小やニュートリノ種の数、ニュートリノが振動によって変化する先のニュートリノの種類によらず、ニュートリノの振動の有無を決定出来る。

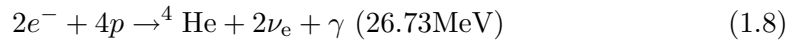
1980年から2000年代に加速器や原子炉を用いる実験でニュートリノ振動探索が精力的に行われ、振動パラメータの許容領域も狭められてきた。次章で詳しくその経緯に触れる。

ニュートリノ源	エネルギー E(GeV)	距離 L(km)	$\Delta m^2(eV)^2$	主な振動
加速器	0.1 ~ 100	1 ~ 1000	$10^{-3} \sim 100$	$\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$
原子炉	$\sim 10^{-2}$	$10^{-1} \sim 100$	$10^{-1} \sim 10^{-3}$	$\nu_e \rightarrow \nu_X$
大気	$1 \sim 10^2$	$10 \sim 10^4$	10^{-4}	$\nu_\mu \rightarrow \nu_\tau$
太陽	$\sim 10^{-3}$	$\sim 10^8$	10^{-11}	$\nu_e \rightarrow \nu_X$

表 1.2: ニュートリノ振動における位相 $(\Delta m^2 L/4E) \simeq \pi/2$ の領域

1.3 太陽ニュートリノ問題

太陽ニュートリノは太陽中心付近で n 核融合反応



の反応によって放出される、電子型ニュートリノである。pp チェーンと CNO サイクルという 2 系統の核融合反応があり温度によって支配的な反応が異なる。pp チェーンは全エネルギーのうち 98.5%を生成する様々な原子核反応である (図 1.1)。太陽の中心温度は $1.56 \times 10^7\text{K}$ であり、 $1.8 \times 10^7\text{K}$ 以上の温度で CNO サイクルが支配的になる (図 1.2)。放出ニュートリノのエネルギースペクトルは図 1.3 のように表される。

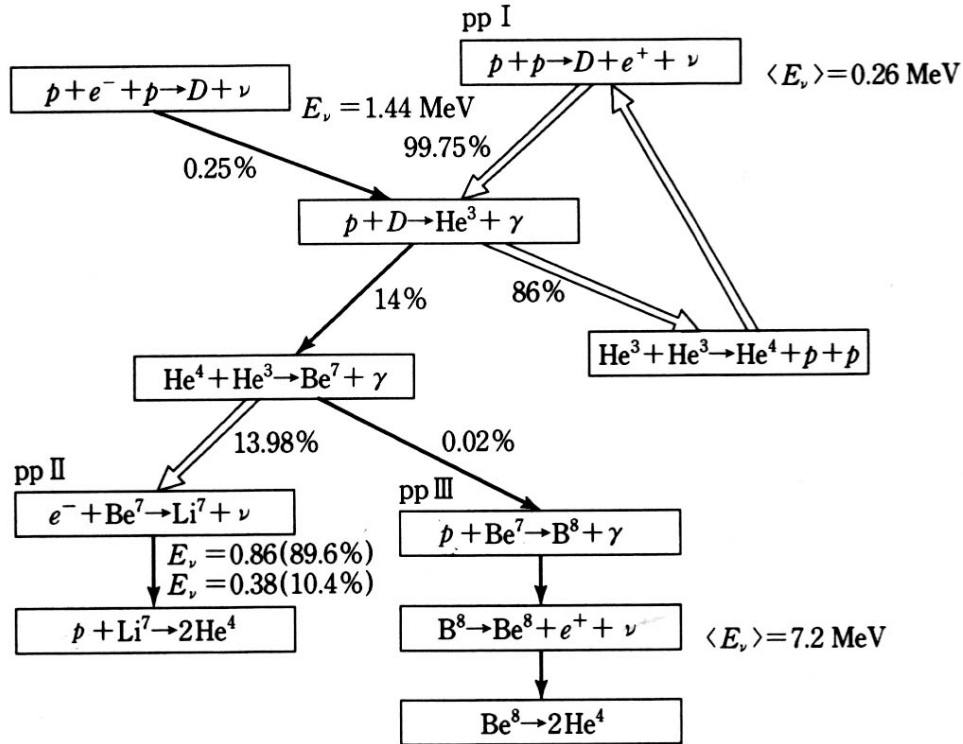


図 1.1: pp チェーン

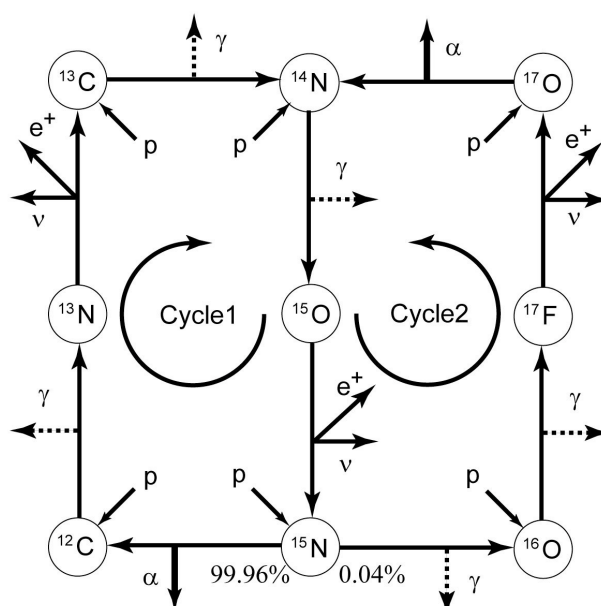
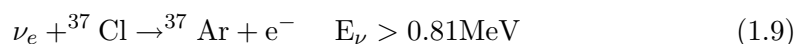


図 1.2: CNO サイクル

最初に太陽ニュートリノを検出したのはアメリカのホームステイク鉱山に設置した615 トンの二塩化炭素 (CCl_2) ニュートリノ検出器であり、1968 年であった [1]。検出反応は



である。宇宙線によるバックグラウンドを防ぐ為、615 トンの液体二塩化炭素 (液体洗剤の一種) を地下 1620m に設置し、更に中性子起因のバックグラウンドを防ぐ為に装置全体を水のタンクに沈めた。ニュートリノによって生成されたアルゴン原子核は軌道電子を捕獲して半減期 35 日で元に戻るが、装置を 35 日以上止める事無く稼働させれば、生成量と崩壊量が釣り合って一定量のアルゴンが定常的に存在することになる。アルゴンは気体になって浮いているのでヘリウムガスを送り込んで取り出し、活性炭に通すことで回収する。アルゴンが塩素に戻るときに特性 X 線を放射することを利用し、比例計数管で計測すれば間接的にアルゴン数が分かり、つまりニュートリノの反応数が測定出来る。この方法はアルゴンを一定期間 (半減期の 35 日以上) 保管してから測定する方法なので、ニュートリノの到来時間、到来方向、エネルギーは検出出来ない。ニュートリノ源も太陽以外の可能性を排除して消去法で考えている。この塩素実験から得られた太陽ニュートリノフラックスは、星の進化等から総合的に決められる標準太陽模型 (SSM=Standard Solar Model) の予測値と観測値を比較すると以下ようになる。但し SNU(Solar Neutrino Unit) は $\text{Events} / 10^{36} \text{ atom} / \text{sec}$ 、つまり 10^{36} の標的粒子に対して毎秒 1 個の捕獲が生じることを意味する。

SSM 理論 : 7.9 SNU

観測値 : 2.05 ± 0.3 SNU

の様に1/3程度しかなく、長い間”太陽ニュートリノ問題”と呼ばれる謎となった。この後30年に渡って様々な検証がなされ、最終的にはニュートリノ振動の存在の証明によって解決される。

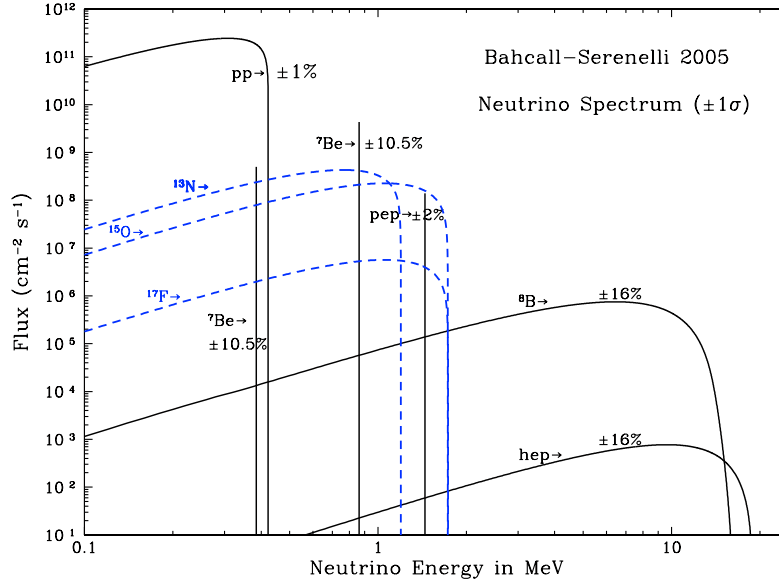


図 1.3: 太陽ニュートリノのエネルギースペクトル：標準太陽模型によるニュートリノのエネルギースペクトル。青い点線がCNO サイクルによって生成されるニュートリノ、黒線が pp チェーンによって生成されるニュートリノ。[2]

1.4 二重ベータ崩壊

ニュートリノがマヨラナ粒子という、粒子と反粒子の区別が無いフェルミオンである可能性に答えを出すことが研究されている。もしニュートリノがマヨラナ粒子であればレプトン数は保存せず、この可能性を実験的に確認出来るのが二重ベータ崩壊の探索である。

二重ベータ崩壊とは原子核が電子を2個放出して原子番号が2大きい原子核になる反応で、 2ν モードと 0ν モードの二種類がある (図 1.4)。

$$2\nu\text{モード} : (Z) \rightarrow (Z+2) + 2e^- + 2\nu_e$$

$$0\nu\text{モード} : (Z) \rightarrow (Z+2) + 2e^-$$

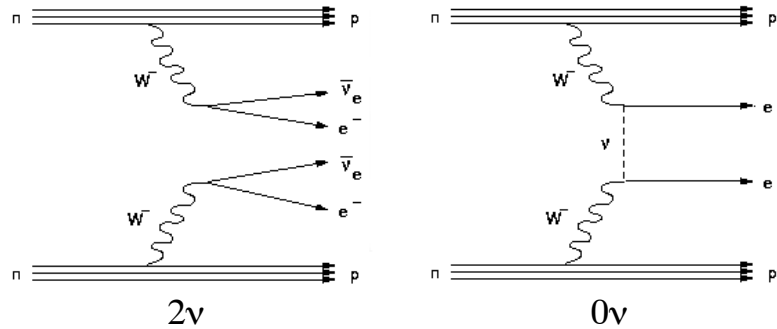


図 1.4: 二重ベータ崩壊の2つの過程：左図が 2ν モード、右図が 0ν モードである。

2ν モードは通常のベータ崩壊が核内で 2 重に起きるもので、弱い相互作用の高次効果として期待されるものである。 0ν モードは反応の前後でレプトン数が 2 変化していて、レプトン数保存則が破れて初めて起きる反応であり、ニュートリノがマヨラナでなければ起こらない。粒子数保存則の破れは現在の宇宙が物質優勢であることを物理法則で説明することの直接的な鍵となり、我々がなぜ存在するのかという根本原理にも言及出来る。現在世界中でこの反応の検出実験が進行中または計画中であり、ニュートリノ実験分野で最も活発に研究が進められている課題の一つである。

1.4.1 ニュートリノの質量

0ν モードの崩壊率はニュートリノの質量の二乗に比例し以下の様に表せる。

$$|T_{1/2}^{0\nu}(0^+ \rightarrow 0^+)|^{-1} = G^{0\nu} |M_{\text{NM}}^{0\nu}|^2 <m_{\beta\beta}>^2 \quad (1.10)$$

G は位相空間の体積、 M は行列要素、 $m_{\beta\beta}$ はニュートリノの有効質量を表し、二重ベータ崩壊で観測出来る質量である。有効質量は主に電子ニュートリノであるが、種々の間に混合があるので

$$<m_{\beta\beta}> = |\sum_i |U_{ei}|^2 m_{\nu i} e^{i\alpha_i}| \quad (1.11)$$

と表せる。ここで U は種々の間の混合行列である。マヨラナニュートリノの場合、 α で表されるマヨラナ位相も入っている。二重ベータ崩壊で観測出来る有効質量は 3 種類のニュートリノの質量パターンによっている。ニュートリノ振動実験から質量差に制限が加わっているが、ニュートリノの質量自体は測定されていなく、最も軽いニュートリノの質量をパラメータとして二重ベータ崩壊で観測出来る有効質量をプロットしたものが図 1.5 である [3]。ニュートリノの質量の関係のパターンは 3 つある。

1. 縮退 (degenerate) : 3 種類のニュートリノの質量がその差よりも大きく殆ど同じ質量を持つ ($<m_{\beta\beta}> > 0.1\text{eV}$)
2. 逆階層 (inverted hierarchy) : 電子ニュートリノが最も重い ($0.03\text{eV} < <m_{\beta\beta}> < 0.1\text{eV}$)
3. 順階層 (normal hierarchy) : 電子ニュートリノが最も軽い ($<m_{\beta\beta}> < 0.01\text{eV}$)

式 1.11 においてマヨラナ因子の為に固有のマヨラナ質量が大きいにも関わらず観測される $<m_{\beta\beta}>$ が小さいという状況があり得る。

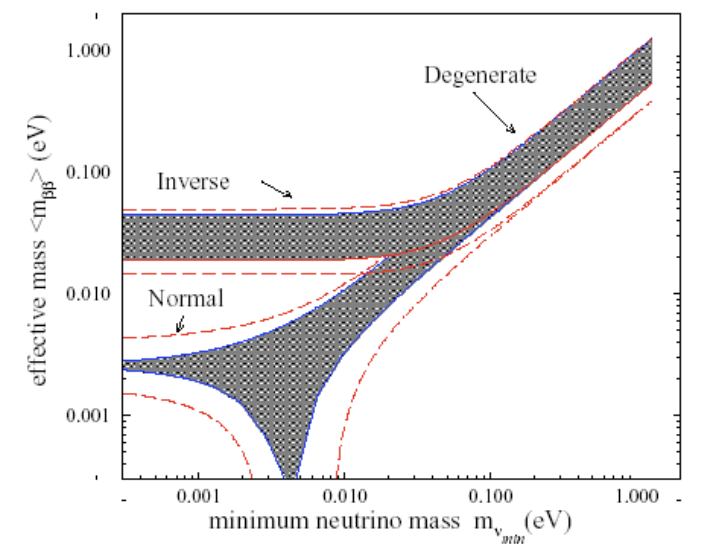


図 1.5: 二重ベータ崩壊観測実験によるニュートリノの質量の測定値とニュートリノの質量パターンの関係：ニュートリノ振動実験から予測されるニュートリノの質量パターンを横軸にとり、縦軸はニュートリノの実行質量である。0.4MeV よりも高い領域は排除されていると考えられる。

1.4.2 実験方法

実験的には 0ν モードと 2ν モードは、2つの電子のエネルギーの和が一定値を取るか、連続値を取るかで区別することが出来る (図 1.6) $10^{18} \sim 10^{24}$ 年、若しくはそれ以上の崩壊寿命を持つ二重ベータ崩壊核 (^{48}Ca , ^{76}Ge , ^{82}Se , ^{100}Mo , ^{128}Te , ^{130}Te , ^{136}Xe , ^{150}Nd) を用いる為、非常に稀にしか起きない反応を検出しなければならず自然環境や検出器に含まれる放射性物質によるバックグラウンドの除去が大きな課題となる。

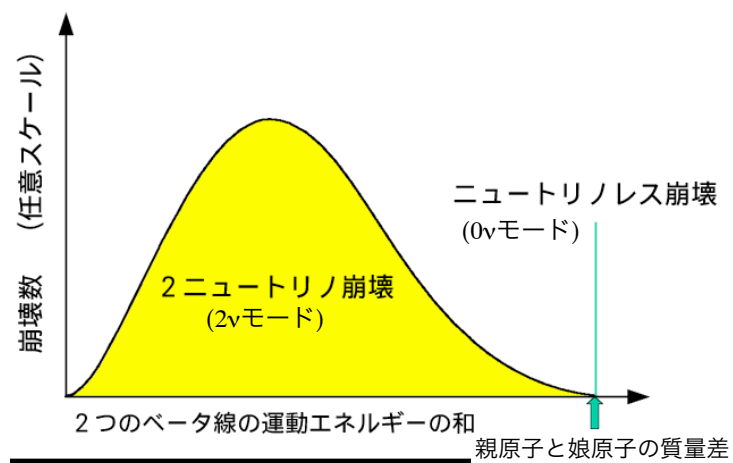


図 1.6: 二重ベータ崩壊の電子のエネルギースペクトル：連続値と取るか一定値を取るかで区別することが出来る。

測定装置には線源と崩壊に伴って放出される電子を検出する検出器が必要であり、検出器が線源を兼ねるタイプと検出器と線源が独立なタイプがある。前者で代表的なのが ^{76}Ge を用いる実験が挙げられる。自然存在比 8% の ^{76}Ge を 80% 程度まで濃縮したもので半導体検出器を作り、その中で崩壊の結果生成された電子の全エネルギーを測定する。約 11kg の ^{76}Ge を用いた HEIDELBERG-MOSCOW 実験は最も良い感度を達成しており、ニュートリノの質量にして 0.3eV より小さいという上限値が得られているが、同じデータを用いた解析で 0ν モードを観測しニュートリノが 0.4eV 程度の質量を持つという結果が出されたこともあり、議論がなされている。[4]

現在研究の重要性から世界中で実験が進行中、または計画中である。有効質量にして 0.1eV 程度まで探れば 3 種類のニュートリノがほぼ同じ質量を持つ縮退した可能性を検証出来、0.03eV 程度まで到達すると逆階層領域まで、0.001eV 程度まで到達すると順階層領域まで検証することが出来る。高感度を実現するには大量の二重ベータ崩壊核を用い、Q 値領域の放射線バックグラウンドを減少させ、エネルギー分解能を向上させて 2ν モードからの寄与を無くす必要がある。図 1.7 に各実験の使用原子核と感度をまとめる。目下の課題である ^{76}Ge 実験の検証には少なくとも有効質量 0.1eV の感度が必要であり、極低バックグラウンド環境を目指して段階的な目標のもと多数のプロジェクトが進行中である。

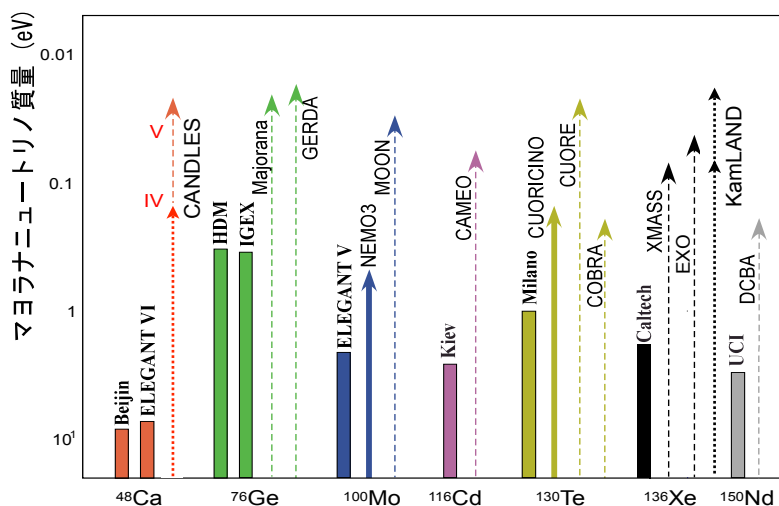


図 1.7: 各実験の使用原子核と到達感度：実線は稼働中の実験、点線は建設中又は計画中的実験を示す。

第2章 方向検出の物理的目的とその応用

反ニュートリノの到来方向検出は様々な物理的目的を持つ。地球反ニュートリノ、超新星反ニュートリノ、原子炉反ニュートリノについてまとめ、方向検出がどのようなインパクトを与える可能性があるのかを述べる。

2.1 地球反ニュートリノ

地球は太陽系と同時に誕生し、塵や隕石が付着して成長する過程で鉄やニッケル等が底に沈みケイ素等は表面に堆積して現在の姿になったが、現在でも詳細な構造形成過程の解明には至っておらず地球の内部構造や熱の分配の理解が必要である (図 2.1)。地球内部で発生する地熱はマンツルの対流を起し長期的には大陸移動、短期的には地震等を誘発する。地震波を解析することで速度分布から内部物質の密度と粘度が解り、地球構造のモデルを作ることが出来るが内部物質の化学的素性に関しては言及することが出来ない。またマンツルの対流には二層対流モデルと一層対流モデルの二つの説があり地震波解析によって検証されているが、どちらの説に対しても確証は得られておらず、未だに議論がなされている。化学的素性を知るには主としてボーリングによる大陸地殻のサンプリングや地上噴出岩石の採集が挙げられるが、到達できる深度が前者で 12km、後者でも 200km と限られる上に表層と深部の差やサンプリングバイアスにより高精度の測定には至っていない。

このように最も身近な天体である地球に関して生成過程や構造が明らかになっておらず、地球深部の直接測を目指した地球反ニュートリノの検出が研究されている。

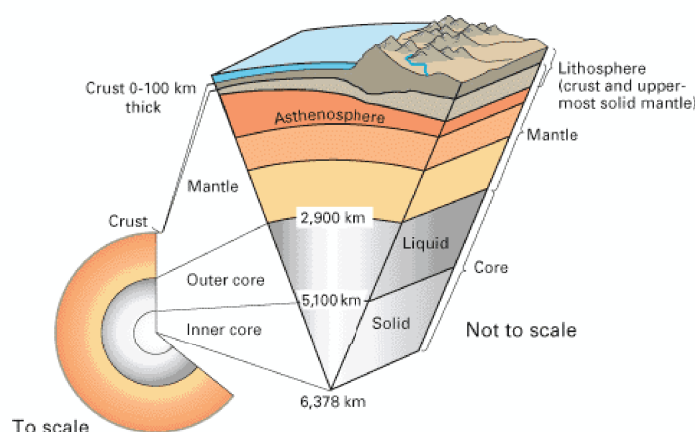
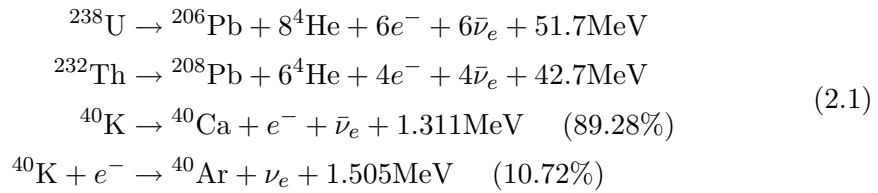


図 2.1: 地球の内部構造：マンツル対流の構造、放射性物質の量と分布、化学組成等、多くの基本的事実が解明されていない。

2.1.1 地球反ニュートリノの地球理解への利用

地球内部で発生する総熱量は地表の各地点で観測される熱流の局所的熱勾配を大局的に拡大して評価され、 44.2 ± 1.0 TW[5] と計算されていた。しかし同じデータを用いて再評価し、 31 ± 1.0 TW[6] という値が示されたこともあり、完全理解には至っていない。

BSE(bulk silicate Earth) モデルと呼ばれる地球の化学組成のモデルが隕石粒 (コンドライト) を化学的に分析することによって求められ、熱源のうち 19 TW が地殻と堆積物、マントルに存在する放射性物質の崩壊によることが求められた。19 TW のうち 84% が ^{238}U と ^{232}Th 崩壊系列に、残りが ^{40}K の崩壊に起因することが示され、崩壊時に放出する反ニュートリノを測定することで BSE モデルのテストを独立に行うことが出来る。式 2.1 に放射性物質の崩壊による熱と反ニュートリノの生成を示す。



また放射性物質の崩壊による熱量と総熱量の差の原因として、液体核の固化熱、マントル中の重量物浮遊、冷却熱、地球内原子炉の存在等が考えられているが、詳しい理解はされていない。通常 5~10TW が核内で発生すると見なされている。

2.1.2 地球反ニュートリノ検出実験

KamLAND

KamLAND(Kamioka Liquid Scintillator Anti – Neutrino Detector) 実験は岐阜県飛騨市神岡町にある池の山の山頂より地下約 1000m に建設され、低エネルギー領域 (数百 keV から数 MeV) のニュートリノの検出を目的に 2002 年からデータ収集を開始している。円筒形タンクの中に直径 18m の球形ステンレスタンクを有し、中心のバルーンにニュートリノの標的である 1000 トンの液体シンチレータが満たされている。液体シンチレータ検出器としては世界最大である。検出器の概要を図 2.2 に示す。

2005 年 7 月に 2002 年 3 月から 2004 年 10 月までの測定データを用い、世界で初めて地球反ニュートリノの検出に成功した [7]。

地球モデルが与えられるとニュートリノのフラックスが次式の様に計算出来る。

$$\frac{d\phi(E_\nu, \mathbf{r})}{dE_\nu} = A \frac{dn(E_\nu)}{E_\nu} \int_{V_\oplus} d^3\mathbf{r}' \frac{a(\mathbf{r}')\rho(\mathbf{r}')P(E_\nu, |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2} \quad (2.2)$$

A : 単位質量当たり崩壊数

$\frac{dn(E_\nu)}{E_\nu}$: 単位エネルギー当たりのニュートリノ崩壊数

$a(\mathbf{r}')$: 岩石単位質量当たりの放射性物質質量

$\rho(\mathbf{r}')$: 岩石密度

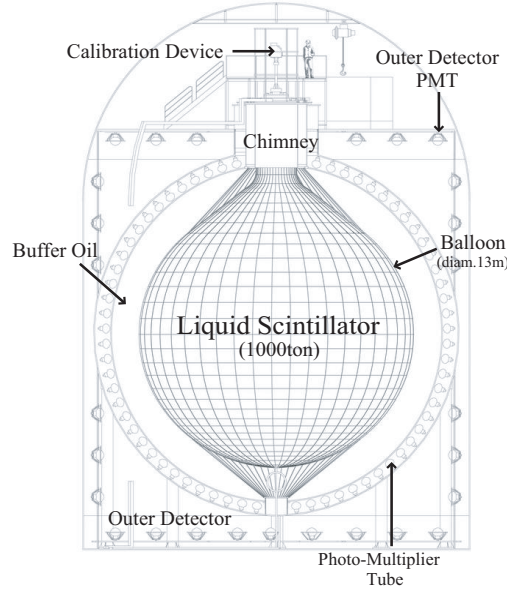


図 2.2: KamLAND 検出器

上式で用いられている距離 $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ 通過後のニュートリノ生存確率 $P(E_\nu, |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)$ は

$$P(E_\nu, |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) = 1 - \sin^2 2\theta_{12} \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m_{12}^2 [\text{eV}^2] L [\text{m}]}{E_\nu [\text{MeV}]} \right) \quad (2.3)$$

但し $L = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ 、 $\Delta m_{12}^2 = 7.9_{-0.5}^{+0.6}$ 、 $\sin^2 2\theta_{12} = 0.82 \pm 0.07$ である。地球反ニュートリノの場合 $P(E_\nu, |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) = 1 - 0.5 \sin^2 2\theta_{12} \simeq 0.59$ と置いて良い。これはニュートリノ生成地点が地球に均等に分布しているので物質効果の誤差が1%以下となり、無視出来る。以上より求められた、KamLAND に飛来する地球反ニュートリノのフラックスとエネルギースペクトルを図 2.3 に示す。左図から全フラックスの25%が半径50kmから、50%が半径500km以内から到来していることが読み取れる。また右図はエネルギースペクトルを示し、KamLAND のエネルギー閾値 1.8MeV よりも低いエネルギー分布である ^{40}K は測定出来ず、 ^{238}U 系列と ^{232}Th 系列のみを検出出来ることがわかる。

図 2.4 に実際に観測された地球反ニュートリノのデータを示す。全事象 152 のうち予測バックグラウンドは 127 ± 13 イベントであった。地球反ニュートリノは 25_{-18}^{+19} イベント、つまり $5.1_{-3.6}^{+3.9} \times 10^{-31} \bar{\nu}_e / \text{p} \cdot \text{yr}^{-1}$ と見積もられた。これは放射性物質の総熱量が 19TW、上限値が 60TW に相当し、ほぼ地球モデルに一致する。この観測によりニュートリノをプローブとして利用できる可能性が示され、”ニュートリノ地球物理”という新しい分野を開拓したことは大きな成果である。

¹target proton · year

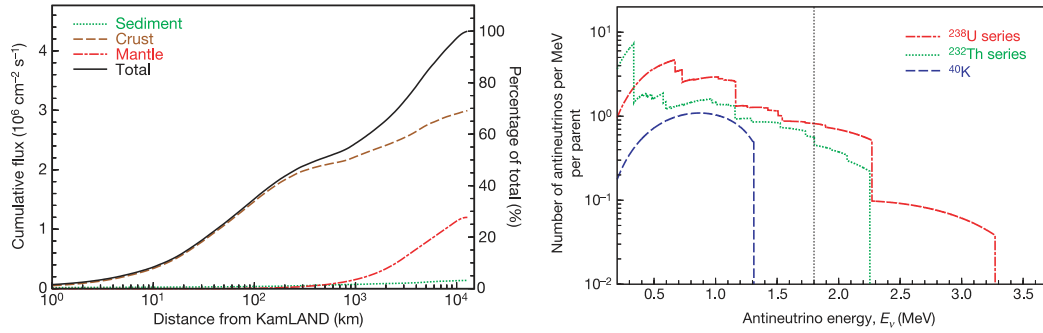


図 2.3: KamLAND に飛来する地球反ニュートリノのフラックスとエネルギースペクトル：左図は地球内部の ^{238}U と ^{232}Th による合計の反ニュートリノフラックスを KamLAND までの距離の関数でとして描いている。地殻、マントル、堆積物のそれぞれの寄与を示し、全フラックスの 25% が半径 50km から、50% が半径 500km 以内から到来している。右図は ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{40}K によるエネルギースペクトル。 ^{40}K は KamLAND のエネルギー閾値 (1.8 MeV) 以下なので検出不可能である。

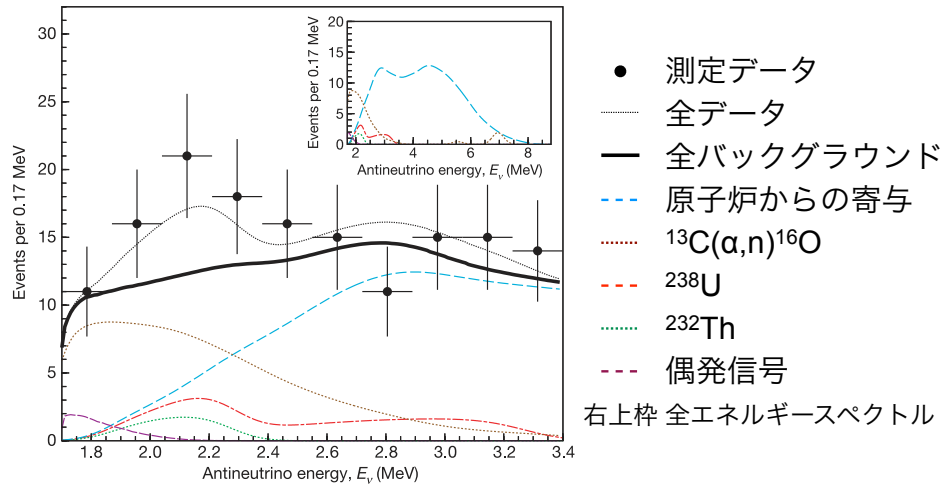


図 2.4: KamLAND による地球反ニュートリノの測定結果：観測期間 750 日、 $(7.09 \pm 0.35 \text{ events}) \times 10^{31} / \text{target proton} \cdot \text{years} = 5.1^{+3.9}_{-3.6} \times 10^{-31} \bar{\nu}_e / p \cdot \text{yr}$ 。

HANO HANO

ハワイで計画中の地球反ニュートリノ、原子炉反ニュートリノの検出を目的とした実験でその検出器に大きな特徴を持つ。図 2.5 に示す様に KamLAND 型の 1400 トンの液体シンチレータを有する検出器が巨大な船上にあり、海上を自由に移動してそれぞれの地点で一定期間の測定を行いながら場所を移動出来る [8]。地球反ニュートリノの検出目的の一つに、マントルと地殻の放射性物質の存在比を求めることがあるが、大陸地殻には全地球の半分もの放射性物質が含まれているのでマントルからの寄与をうまく測定出来ない。しかし地殻が薄い海洋上ではマントルからの寄与を遥かに精度よく測定出来る。原子炉からのニュートリノも地球反ニュートリノの観測にはバックグラウンドとなるので、大陸上に存在する原子炉から遠く離れた海上であれば測定精度を改善出来ると考えられる。しかし地下実験と異なり宇宙線のバックグラウンドが支配的となり、宇宙線耐性のある構造を工夫しなければならない。

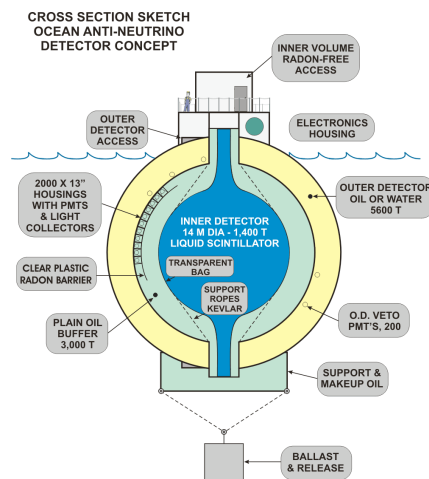


図 2.5: HANO HANO の検出器：海上を移動可能な 1400 トンの液体シンチレータをターゲットとする。

2.1.3 到来方向測定の実用

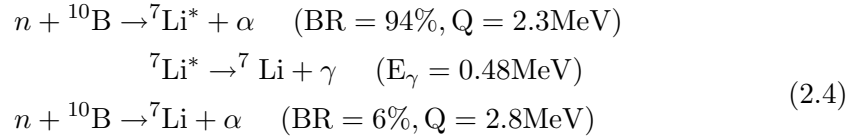
地球反ニュートリノの到来方向が測定可能になった場合

- マントルの成分と地殻の成分を分離でき、大陸下のマントル組成を測定出来る
- マントル対流が一層構造であるのか二層構造であるのか結論をだすことが出来る
- 原子炉反ニュートリノの成分を分離出来、大幅にバックグラウンドを低減出来る
- 方向検出可能な検出器を複数個用い、地球内部の放射性物質の様子をリアルタイムで観察する、地球トモグラフィーが可能になる

等がある。

EARTH

現在進められている、地球反ニュートリノの到来方向検出実験として EARTH (The Earth Antineutrino Tomography) が挙げられる [9]。液体シンチレータを用いた検出方法は本研究と同じ着眼点を持つ。低エネルギー逆 β 崩壊反応 $\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$ において中性子は反ニュートリノの到来方向の情報を保持して放出されることを利用し、情報を失う前に中性子捕獲反応断面積が大きな原子核で捕獲することで到来方向の測定を目指す。以下の様な反応を起こす ^{10}B を含有させることで中性子の散乱回数を低減し位置情報がぼやけることを防ぐ (図 2.6)。



また検出器を細長い形のセル型にしたものをいくつか連ねることで隣接するセルで中性子と陽電子を検出し、イベント数の少ない地球反ニュートリノでも効率よく測定することが考えられている。

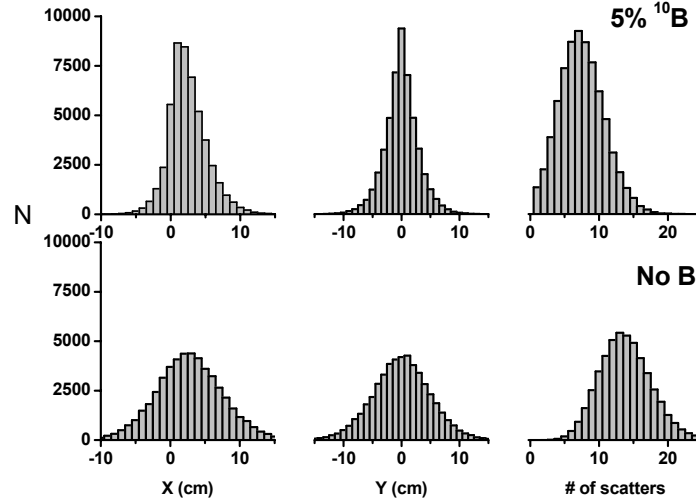


図 2.6: EARTH 検出器の ^{10}B 含有液体シンチレータの性質 [9] : ^{10}B 含有 (5%、上図) と未含有 (下図) 液体シンチレータに対して中性子を 50000 イベント、 $(x, y) = (0, 0)$ から x 軸に沿った方向に打ち込み、捕獲された座標と散乱回数の分布。 ^{10}B 含有の場合、未含有に比べて平均拡散距離が短く、散乱回数も数回に抑えられている。

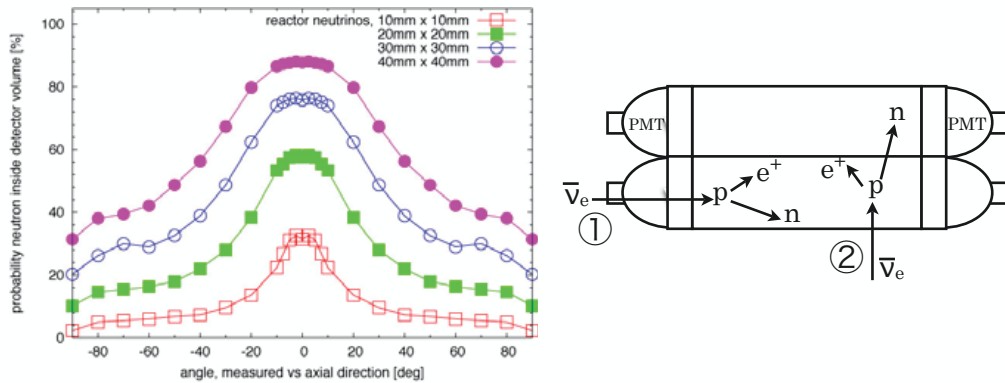


図 2.7: シミュレーションによる反応確率の角度依存性の見積もりと EARTH 実験のセル型検出器の概要 [9]: 左図はそれぞれの直径の一つの検出器における中性子入射方向による反応確率の変化を示したシミュレーション結果。検出器に沿う方向に入射すると (右図 ①) 反応断面積が大きく高い確率で反応が起きるが、検出器に対して直角方向 (右図 ②) に近づくにつれて検出器外に出ることが支配的となる。また検出器の断面積が大きい程高い確率で反応が起きようになる。入射方向による反応確率の依存性を低減する為に右図の様に数個セル型の検出器を連ねたユニットを組んだ構造が考えられている。

2.2 超新星反ニュートリノ

2.2.1 超新星爆発の仮定

超新星爆発とは重い恒星がその一生を終えるときに起こす大規模な爆発で、その時に放出される超新星ニュートリノを 1987 年に Kamiokande などが観測した [10]。超新星爆発にはいくつか段階があり、以下に順を追って示す。

1. 重力崩壊の開始

中心核の質量がチャンドラセカル質量限界を超えた時点で重力崩壊が始まり、核の重力収縮によって電子のフェルミエネルギーが増加する。エネルギーが反応の閾値よりも大きくなると電子捕獲反応が始まり、 ν_e が放出される。この時ニュートリノが持ち去るエネルギーは約 10^{51}erg である。

2. ニュートリノの閉じ込め

核が収縮するにつれ中心密度は上昇していき、密度が $3 \times 10^{10} \text{g/cm}^3$ を超えると電子捕獲反応で放出された ν_e はコヒーレント散乱によって核の外に出られなくなる。

3. 衝撃波の発生 ($t=0$)

ν_e が核に閉じ込められた結果、電子捕獲反応が抑制され核子と原子核が混在したまま核の収縮が進む。その密度が 10^{14}g/cm^3 を超えると、核力の斥力部分の効果で急激に物質が硬くなることで収縮が止まる。収縮の速度は音速よりも遅

いので中心付近の核は音速の伝搬速度程度で収縮が止まり跳ね返るが、その外部の核が超音速で降ってくる為、内部核と外部核との境界で衝撃波が発生する。

4. 中性子化バースト ($t < 10\text{msec}$)

発生した衝撃波は原子核に分解しながら伝搬していく。このとき電子捕獲の断面積は原子核よりも自由電子のほうが大きいので衝撃波の通過していく領域では大量の ν_e が作られる。衝撃波がニュートリノ球の内側を進んでいるときは、作られたニュートリノは外に出る事が出来ないが、ニュートリノ球の外側までくると作られたニュートリノは自由に飛び出し、中性子化バーストと呼ばれる ν_e のバーストを形成する。このバーストの継続時間は衝撃波の伝搬時間に相当し、 10msec 以下である。このとき放出されるエネルギーは瞬間的に 10^{53}erg/sec になるものの、継続時間が短いので全体で 10^{51}erg 程度である。

5. 核表面の爆発 ($10\text{msec} < t < 1\text{sec}$)

衝撃波が通過した後の物質は高温の核子、電子対からなり、核心による (陽) 電子捕獲反応及び対消滅反応から 6 種類全てのニュートリノが生成される。また衝撃波背後の物質はゆっくりと内部核に降り積もり重力エネルギー (10^{53}erg) を熱エネルギーに変換する。このエネルギーをニュートリノが $100\text{msec} \sim 1\text{sec}$ で持ち出す。

6. 原始中性子星の冷却 ($1\text{sec} < t < 10\text{sec}$)

内部核とそこに降り積もった物質で原始中性子星ができる。その中ではニュートリノは熱平衡にあり、 10sec 程度でゆっくり拡散していく、このときニュートリノはさらに $\sim 10^{53}\text{erg}$ の熱エネルギーとレプトン数を持ち出しその結果中性子星ができる。更に核の質量が中性子の縮退圧力で支えられる量よりも重ければブラックホールが形成されることとなる。

7. 超新星爆発 ($t > \text{数時間}$)

核表面に到達した衝撃波は外層を伝搬してそれを吹き飛ばす。外層は温度、密度ともに低い為、衝撃波は衰える事無く進む事が出来、外層表面に達した後、星は光始める。中心から外層表面までは $10^7 \sim 10^9\text{km}$ 程度の距離なので、重力崩壊が始まってから光り始めるまで数時間の遅れがある。

望遠鏡による光学的観測は星が光り始めなければ観測出来ないなので、上記のように重力崩壊が始まってからすでに数時間経った後の星の様子からしか観測出来ない。超新星ニュートリノを観測することで、光学的な観測に比べ数時間前の初期の段階の様子を観測することが出来る。ニュートリノを用いていち早く信号を観測し、その結果を光学的観測に生かすシステムが考えられており SNEWS (SuperNova Early Warning System) と呼ばれている [11]。その場合超新星爆発の起きた位置に制限を与える為に、超新星ニュートリノの到来方向検出は重要な意味を持つ。

2.2.2 到来方向測定の実用

Super-Kamiokande を想定したシミュレーション

超新星反ニュートリノの到来方向の検出の可能性が Super-Kamiokande の検出器を想定し、シミュレーションによって見積もられている [12]。ターゲットは 32kt の水であり、水中を走る電子が光速を超えたときに発するチェレンコフ光を検出する。弾性散乱 ($\bar{\nu}_e e^- \rightarrow \bar{\nu}_e e^-$) による場合と、逆 β 崩壊反応 ($\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$) が起きる場合が考えられる。両者の反応断面積は計算されており ([15]) 図 2.8 のようにニュートリノの到来方向に対して分布を持つ。左図は電子散乱の場合であり Super-Kamiokande 実験のエネルギー閾値である 5MeV を条件に課すと、 $\cos\theta > 0.95$ にのみイベントが存在するのが読み取れる。右図は逆 β 崩壊の場合であり、ニュートリノのエネルギーが高エネルギーになる程前方に散乱されるものが多いがほぼ等方的である。

重力崩壊型超新星爆発のモデルを想定し、10kpc²の距離にある天体を仮定した。シミュレーションの結果を最小二乗法によって解析したニュートリノの到来方向に対する角度分布を図 2.9 に示す。点線は反応断面積から計算される分布であり、図 2.8 で示したように $\cos\theta = 1$ 付近では弾性散乱による反応が支配的になっている。この結果から超新星に対する角度分布を計算し得られた分布を Gaussian でフィットした結果、 $\Delta\theta_{SN} = 9.2^\circ$ と計算された。

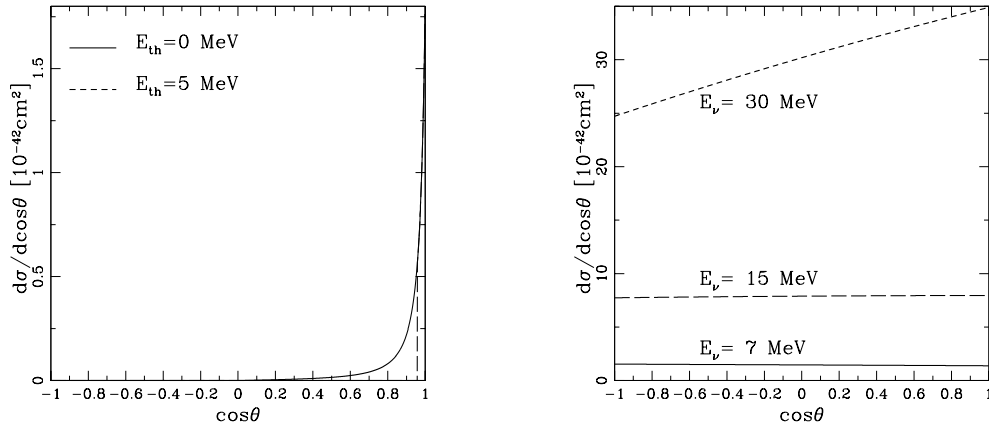


図 2.8: 弾性散乱と逆 β 崩壊の反応断面積：左図が弾性散乱 $\bar{\nu}_e e^- \rightarrow \bar{\nu}_e e^-$ 、右図が逆 β 崩壊 $\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$ 。弾性散乱では Super-Kamiokande のエネルギー閾値 5MeV を設定した場合 $\cos\theta > 0.95$ にのみイベントが存在する。逆 β 崩壊ではニュートリノのエネルギーが高くなる程、前方に散乱される確率が増しているが、ほぼ等方的である。両者を合わせ考えると $\cos\theta = 1$ 付近でのみ逆 β 崩壊が支配的になり、それ以下では弾性散乱が支配的である。

² キロパーセク。1pc は約 3.26 光年。

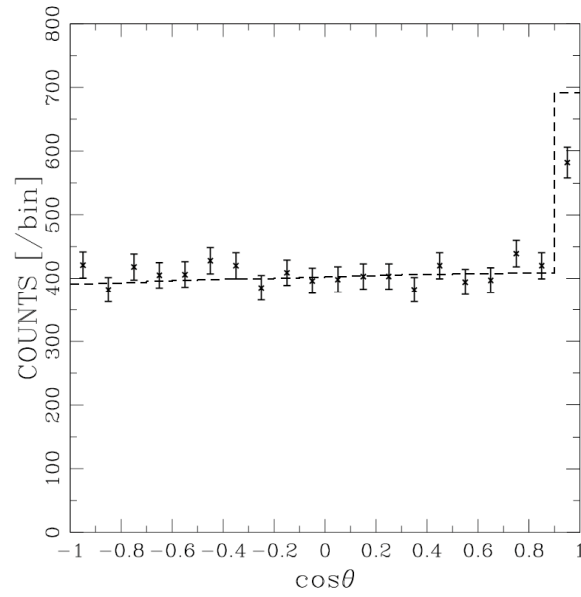


図 2.9: ニュートリノの到来方向に対する角度分布：最小二乗法による解析結果。点線は反応断面積から計算された分布である。この結果より超新星の位置に対する角度分布を計算し得られた分布を Gaussian でフィットした結果、 $\Delta\theta_{SN} = 9.2^\circ$ と求められた。

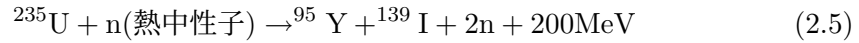
^6Li 含有液体シンチレータの応用

上記の Super-Kamiokande を想定した場合、 $\cos\theta = 1$ 付近では弾性散乱が、それ以外では逆 β 崩壊が支配的になっている。反応点から得られた角度分布と超新星の方向は、全反応が逆 β 崩壊である ^6Li 含有液体シンチレータの方が強い相関を持っていると考えられる。KamLAND サイズの様な大型検出器で方向検出が可能であれば、水チェレンコフ光を利用した検出よりも精度良く超新星爆発の方向を見積もることが出来ると予測される。

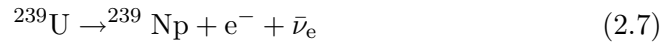
2.3 原子炉反ニュートリノ

原子炉の運転状況は高い精度でコントロールされているので発生数やエネルギーが良く理解されたニュートリノを得ることができ、ニュートリノ振動の精密測定に利用される。

一般的な軽水炉では3~5%の ^{235}U が含まれるウラン(^{238}U)燃料を使用している。 ^{235}U は熱中性子を吸収して、二つの原子核と中性子に分裂しエネルギーを放出する。以下に分裂の一例を示す。



燃料の大部分を占める ^{238}U 自身は核分裂を起こさないが以下の過程で高速中性子を吸収してプルトニウムになり、そのプルトニウムが更に高速中性子を吸収して核分裂を起こす。



^{235}U や ^{239}Pu の核分裂によって放出される平均エネルギーは 200MeV 程度であり、 $1\text{MeV}=4.45 \times 10^{-20}\text{kWh}$ なので、一回の核分裂によって放出されるエネルギーは

$$4.45 \times 10^{-20}[\text{kWh/MeV}] \times 200[\text{MeV}] = 8.9 \times 10^{-20}[\text{kWh}]$$

と計算出来る。例えば世界最大の合計熱出力を有する、新潟県柏崎刈羽原子力発電所の6号機は3.926GWの熱出力を持つが、一秒間の核分裂回数は

$$3.926 \times 10^9[\text{W}]/(8.9 \times 10^{-18}[\text{kWh}] \times 3600[\text{sec}]) \sim 1.23 \times 10^{20}$$

となる。

核分裂によって生成される原子核は中性子過剰である為、安定核になるまで β 崩壊を繰り返す。核分裂に付随して β 崩壊が平均6回起こり、その過程で反電子型ニュートリノを平均6個作り出す。つまり上記の柏崎刈羽原子力発電所の場合、一秒間で約 7×10^{20} 個のニュートリノレートが得られることになる。放出されるニュートリノのエネルギー分布は核種によって異なり、図2.10に示す。これに観測に利用される逆 β 崩壊反応 $\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$ の反応断面積を掛け合わせたものが、実際に観測される反電子型ニュートリノのエネルギー分布であり、図2.11に示す。

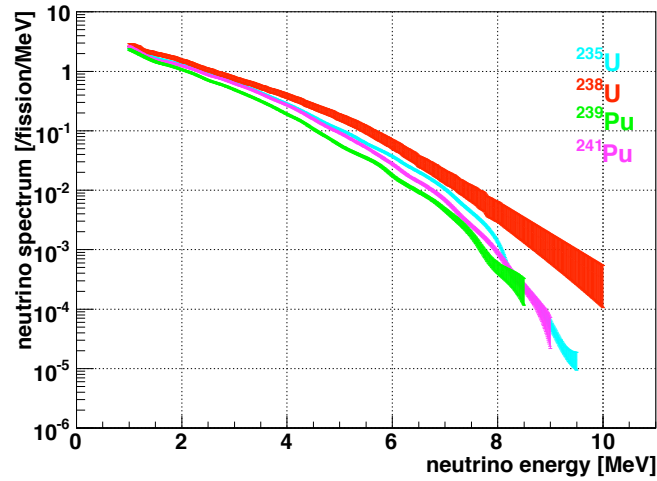


図 2.10: 主な核種から生成される反ニュートリノのエネルギー分布：核分裂反応率から計算した反電子型ニュートリノのエネルギー分布 [13][14][15]。全体の形はニュートリノ振動観測実験、Bugey で 1.4% 以内の精度で正しいことが確認されている [16][17]。

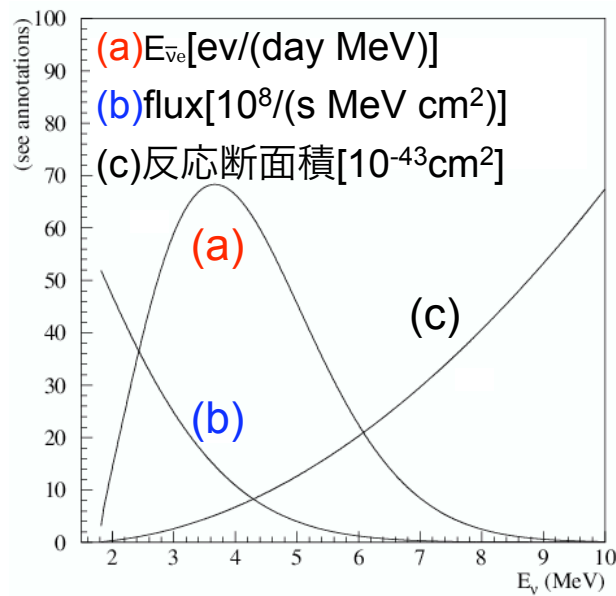


図 2.11: 観測される反ニュートリノのエネルギー分布：核種からの反ニュートリノのフラックス (b) と逆 β 崩壊の反応断面積 (c) を掛け合わせると観測される反ニュートリノのエネルギー分布 (a) が得られる。

2.3.1 原子炉反ニュートリノ検出実験

CHOOZ

フランスの北端でベルギーとの国境付近にある CHOOZ 原子力発電所の熱出力 4.2GW_{th} の沸騰水型原子炉 (ABWR)2 基からの反ニュートリノを観測した。反ニュートリノの検出には5トンの Gd 含有液体シンチレータ ($\sim 0.1\%$) を用い、逆 β 崩壊反応 $\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$ で放出された陽電子による先発信号と、平均 $30\mu\text{sec}$ 後に中性子が Gd に捕獲された時に放出する γ 線を後発信号として遅延同時計測を行った。Gd は中性子捕獲断面積が大きく (49700barn) 平均3本の合計エネルギーが 8MeV の γ 線を放出し、他の放射線バックグラウンドと良く分離出来るという特性がある。外側に17トンの Gd を含まない液体シンチレータの層を設置することで PMT からの γ 線を防ぎ、後発 γ 線が漏れ出した場合にエネルギーの再構成を行う。

原子炉からの距離が約 1km (地下 300m.w.e.^3) であることを利用し、短基線長でのニュートリノ振動パラメータの測定を行った。1997年4月から7月までに測定を行った結果では、観測した反ニュートリノ事象数とニュートリノ振動が無いとした場合の事象数との比は $1.01 \pm 0.028(\text{stat.}) \pm 0.027(\text{syst.})$ と求められた。また振動パラメータの許容範囲は $\Delta m^2 > 7 \times 10^{-4} \text{eV}^2$ 、 $\sin^2 2\theta = 0.10$ と求められた (以上 [18])。他の短基線長実験と長基線長実験 (平均 180km) である KamLAND の測定結果と共に図 2.12 に示す。

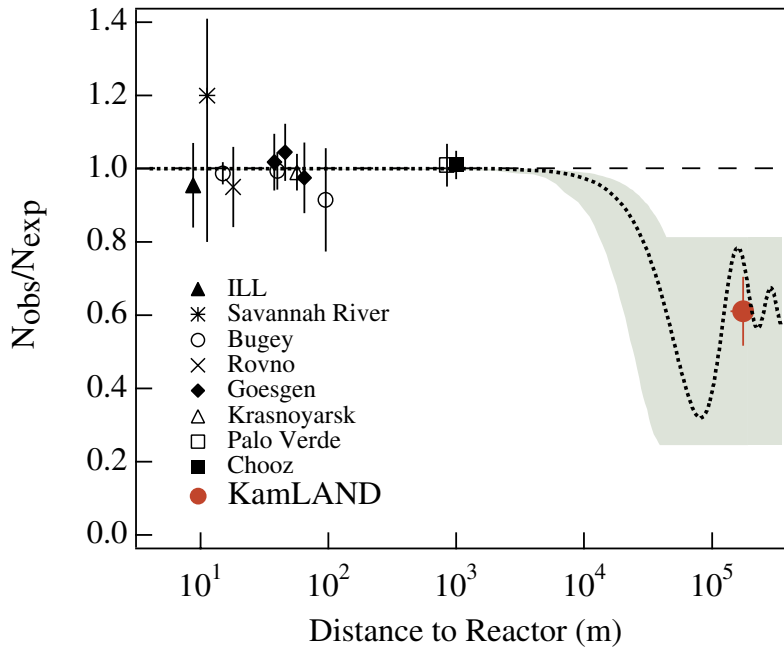


図 2.12: 各実験の原子炉からの距離に対する反ニュートリノの観測事象と予測事象の比の測定結果 [21]: 太陽ニュートリノ LMA 解の予想振動曲線と各実験の測定結果と示す。色付きの範囲はグローバル解析における 95% C.L. の範囲である。

³meters water equivalent. 水に換算した厚みを表す。

またニュートリノ実験において最も重要な課題の一つであり、これまで有限値が測定されずに残っている最後のニュートリノ振動角 θ_{13} の測定を行った。 θ_{13} の測定実験は $E/L \sim \Delta m_{13}^2/2\pi$ の条件を満たす場所で行われる。これまで行われていた実験結果をまとめると、3種類のニュートリノの間の振動確率は図 2.13 のように表せる。T2K 等の加速器実験は $\nu_\mu \rightarrow \nu_e$ の測定、つまり図 2.13 の右上辺

$$P \sim \frac{\sin^2 2\theta_{13}}{2} (\sin 2\theta_{13} + 0.1 \times \sin \delta)$$

を測定していることになる。 θ_{13} は小さいことが分かっているため上式の第 2 項は無視することが出来ず、 δ の不定性が残ってしまう。しかし原子炉反ニュートリノの測定では $\bar{\nu}_e$ の欠損を測定するため $\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_\mu$ と $\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_\tau$ の確率を加えたもの、つまり

$$P_R(\bar{\nu}_e \rightarrow \bar{\nu}_e) = 1 - \sin^2 2\theta_{13}$$

となりのでうまく不定成分を打ち消すことが出来、加速器実験では不可能な $\sin^2 2\theta_{13}$ の直接測定が可能である。この利点を生かして測定しグローバル解析を行った結果 $\sin^2 2\theta_{13} < 0.15 (90\% \text{C.L.})$ という最も厳しい上限値が得られた [19]。

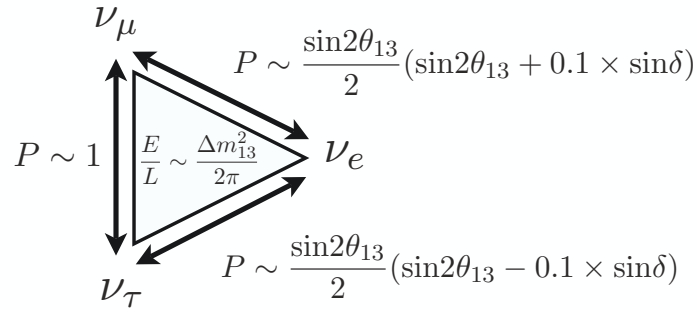


図 2.13: $E/L \sim \Delta m_{13}^2/2\pi$ の場所での 3 種のニュートリノの振動確率：第 2 項の前の符号は反ニュートリノの場合正負が逆になる。

現在は更なる感度の向上を目指し CHOOZ 実験の跡地をそのまま改良した Double CHOOZ 実験の準備中である。現在 $\sin^2 2\theta_{13} < 0.1$ であることが分かっており振動によるニュートリノ欠損は 10% 以下であるので測定精度は 1% 以下でなければならないが、原子炉の運転状況から予測するニュートリノの発生状況は数%の精度でしか求めることが出来ず、さらに検出器自体の検出効率の精度数%も加わり現状では精度が不足している。そこで振動が小さい原子炉の近くに同一構造の検出器 (Near 検出器) を設置し、最大振動付近の検出器 (Far 検出器) のデータと比較することでこれらの不確定性を打ち消し合い、1% 以下の測定精度を目指す。CHOOZ 実験で用いた検出器を Far 検出器とし、ニュートリノターゲットの体積の増加 ($5.6m^3$ から $10.3m^3$) やバッファー層と鉄のシールドを新たにもうけることでのバックグラウンドの大幅な低減を目指し、先発信号のエネルギー閾値を 1.3MeV から 1.0MeV 以下にすることが可能となった。Far 検出器のみで 2009 年に測定開始予定であり、2010 年には $\sin^2 2\theta_{13} < 0.06$ の精度に到達し、同 2010 年に Near 検出器を設置して 2012 年には $\sin^2 2\theta_{13} < 0.03$ の

精度に達する予定である。検出器の構造 (図 2.14) と予測到達精度 (図 2.15) を示す (以上 [20])。

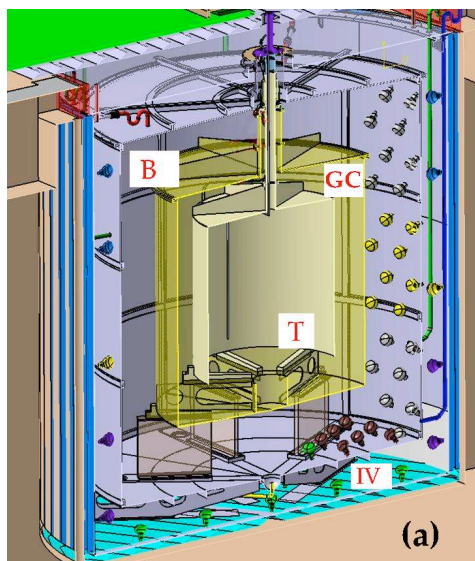


図 2.14: Double CHOOZ 実験の検出器 [20]: T(target volume) は Gd 含有液体シンチレータ、GC(gamma - catcher) は Gd が中性子を捕獲して放出 γ 線が漏れ出た場合に観測する Gd を含まない液体シンチレータ、B(buffer liquid) は発光しない油で PMT からの γ 線がシンチレータに届くのを防ぎ、IV(inner veto) は外側のステンレスタンクで宇宙線を veto する。

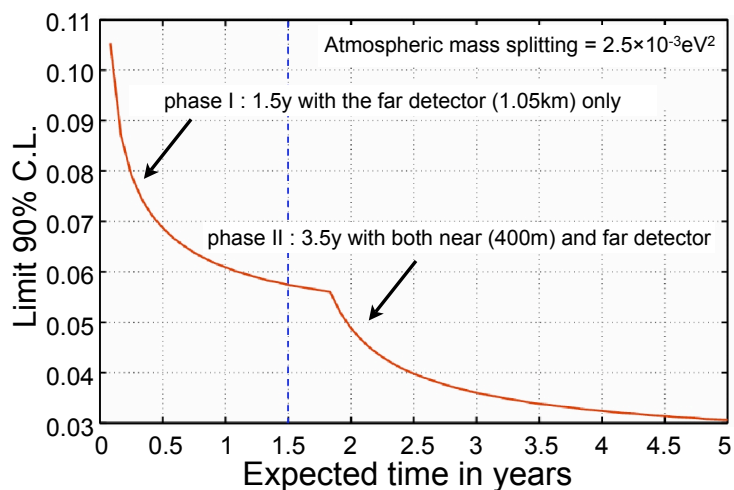


図 2.15: Double CHOOZ 実験の到達精度 [20]: $\sin^2 2\theta_{13}$ の測定限界の時間推移である。始めの 1.8 年間は Far 検出器のみで測定し $\sin^2 2\theta_{13} < 0.06$ に達する予定であり、Near 検出器が完成後 $\sin^2 2\theta_{13} < 0.03$ を目指す。

KamLAND

岐阜県神岡町にある検出器の周りには原子力発電所が点在し、それらからのニュートリノイベントのうち 86%は半径 180km の範囲に分布する。総熱量は約 80GW であり全世界の原子力のうち 20%が集中している。新潟県柏崎刈羽原子力発電所からの寄与が最も大きく、他に敦賀、高浜、大飯、美浜、浜岡等が挙げられる。図 2.16 に日本の主な原子炉の位置とニュートリノイベントの KamLAND からの距離による分布を示す。

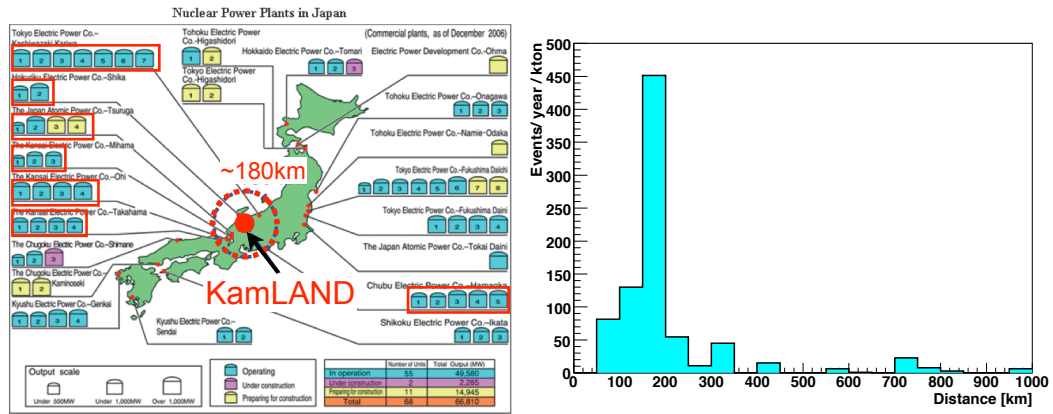


図 2.16: 日本の主な原子炉の位置とニュートリノイベントの KamLAND からの距離による分布：KamLAND から半径 180km の範囲にある原子力発電所 (左図では赤で示した) の寄与が全ニュートリノイベントの 86%を占める。

ニュートリノ振動の確率は 2 つの振動パラメータ (Δm^2 , $\sin^2 2\theta$) を用いて

$$P(\nu_e \rightarrow \nu_X) = \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{\Delta m^2 L}{4E_\nu} \right) \quad (2.11)$$

で与えられる。 Δm^2 は関与する 2 種類のニュートリノの質量固有値の 2 乗の差、 θ は (ν_e , ν_X) と質量の固有状態 (ν_1 , ν_2) との混合角である。KamLAND は大出力原子力発電所が 180km という長距離にある事を利用し、 $\Delta m^2 \sim 1.0 \times 10^{-6} [eV^2]$ 、 $\sin^2 2\theta > 0.1$ まで探索可能である。 $\sin^2 2\theta$ の感度はそれまでの実験の約 100 倍以上であり、世界にも類を見ない高感度実験であると言える。

2002年12月に最初の結果を示し、実測定時間145.1日、原子炉の運転記録から予測される反電子型ニュートリノ反応事象は 86.8 ± 5.6 事象、宇宙線等に由来するバックグラウンド事象が 2.8 ± 1.7 事象、対して観測した事象は54事象であった。観測値と予測値との比は $0.589 \pm 0.085(\text{stat.}) \pm 0.042(\text{syst.})$ となる。この結果より $\bar{\nu}_e$ の欠損をニュートリノ振動で説明する場合、原子炉反ニュートリノのエネルギーが $\sim 4\text{MeV}$ 程度であることから $\Delta m^2 > 10^{-5} \text{eV}^2$ でなければならず、地球磁場が太陽と比べて非常に弱いことから磁気モーメントを使うモデルは排除される。このようにしてニュートリノ振動のLMA(Large Mixing Angle)解⁴以外の可能性は排除され、長きに渡った”太陽ニュートリノ問題”は解決に至った。[21]

更に2004年11月、2002年5月から2004年1月までの515.1日分のデータを用いた結果が示された。データ量が3.5倍になり有効体積を33%増加させ(半径5mから5.5m)検出効率は15%改善し(78.3%から89.8%)、統計が約1.5倍になった。原子炉の運転記録から予測される反電子型ニュートリノ反応事象は 365.2 ± 23.7 事象、バックグラウンド事象 17.8 ± 7.3 事象、観測事象は258事象となり、99.998%の信頼度でニュートリノ欠損を再確認した。[22]

全ての原子炉が定常的に運転している訳ではなく、運転状況によってL/E(Eは原子炉反ニュートリノのエネルギー、Lは原子炉からの平均距離。KamLANDの場合L=180kmとする。)の実効値が変動する。これを利用し変動効果の無いときの値を基準として、ニュートリノの減少率をL/Eの関数として描いたのが図2.17である。更に Δm_{12}^2 、 $\sin^2 2\theta_{12}$ の最良値が現在までの太陽ニュートリノ観測データとKamLANDのデータを総合して得られ(図2.18)

$$\begin{aligned} \tan^2 \theta_{12} &= 0.40_{-0.07}^{+0.10} \\ \Delta m_{12}^2 &= 7.9_{-0.5}^{+0.6} \times 10^{-5} \text{eV}^2 \end{aligned} \quad (2.12)$$

と与えられた。2002年の時点で既にLMA解のみに限定されていたが、その許容領域は Δm_{12}^2 で約3倍の不定性を持っていた。しかしこの2004年の結果により Δm_{12}^2 は約8%の不定性に抑えられ、太陽ニュートリノ実験の結果と合わせたグローバル解析の許容領域は、 Δm_{12}^2 に関してはKamLAND実験、 $\tan^2 \theta_{12}$ に関しては太陽ニュートリノ実験が強い制限を与えている。

⁴ニュートリノ振動の混合角の大小、振動の長さの特徴により、SMA(Small Mixing Angle, 小混合角)解、LMA(Large Mixing Angle, 大混合角)解、LOW(low Δm^2 , 小質量差)解、just-so(真空振動)解と呼ばれる4つの許容領域が考えられる。これらのうちどれが真の解であるかを見極めるのはニュートリノ振動のエネルギー依存性、物質のニュートリノ振動に与える効果の解明等の重要な意味を持つ。

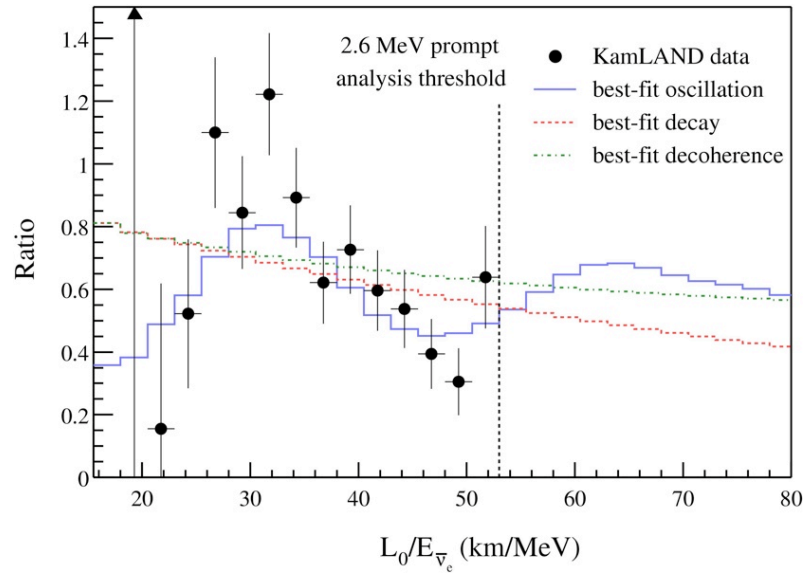


図 2.17: 反電子型ニュートリノの L/E 分布 (2004 年)[22] : L は原子炉からの平均距離で 180km に固まっている。データは振動のパターンを再現し、崩壊現象や非干渉効果とするモデルは否定された。またエネルギー閾値は地球ニュートリノの影響を避けるため $E_{\text{vis}} > 2.6\text{MeV}$ としている。

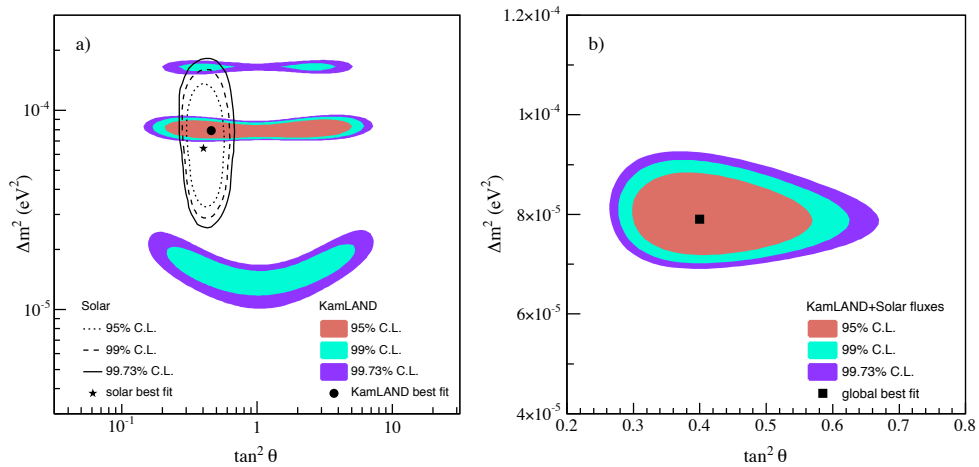


図 2.18: 原子炉ニュートリノ振動パラメータの測定 (2004 年)[22] : 左図は KamLAND 実験のみの結果を用いた反電子ニュートリノ測定と太陽ニュートリノ実験での電子ニュートリノ測定による 2 成分ニュートリノ振動パラメータび許容領域。右図は KamLAND 実験と太陽ニュートリノ実験の解析結果を組み合わせた許容領域 (CPT 対称性を仮定)。 $\tan^2\theta_{12} = 0.40^{+0.10}_{-0.07}$ 、 $\Delta m_{12}^2 = 7.9^{+0.6}_{-0.5} \times 10^{-5} \text{eV}^2$ と与えられる。

2008年1月に示された結果では更に改良が加えられ、ニュートリノ振動パラメータの精密測定を行った [23]。データ使用期間を 515.1 日から 1490.8 日に広げ、先発信号のエネルギー閾値を 2.6MeV から逆 β 崩壊の閾値に対応する 0.9MeV に下げ、有効体積も 5.5m から 6.0m に広げることで統計を増加することに成功した。これによりニュートリノ振動が無いと仮定した場合の原子炉の運転記録から予測される反電子型ニュートリノ反応事象は 2179.4 ± 90.2 事象、バックグラウンド事象が 276.1 ± 23.5 事象に対し 1609 事象観測され、その欠損は 8.5σ の信頼度であった。この改善は、 4π システムと呼ばれる中心軸以外での放射線源による校正により位置の不定性を低減したり、 ^{210}Bi 等の不安定核種による偶発同時計測バックグラウンドを反ニュートリノとの空間分布や相関の違いを利用して効率的に選択する解析手法の開発等の成果である。

図 2.19 に観測した反電子ニュートリノ事象のエネルギー分布を示す。エネルギー閾値が 0.9MeV まで拡張され、最も良いパラメータの場合のスペクトルとも良く合い振動が無い場合を 5.2σ で排除した。

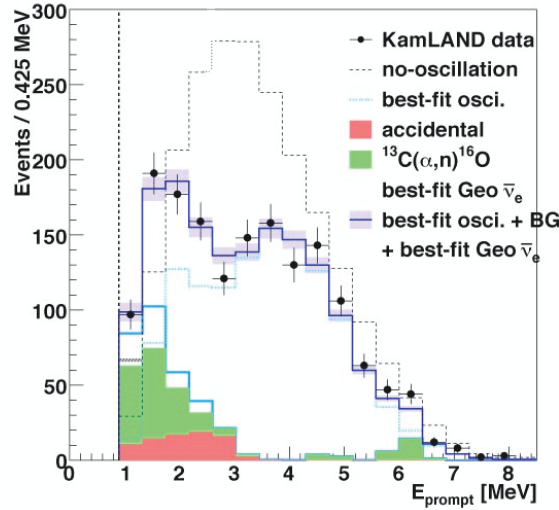


図 2.19: 観測した反電子ニュートリノ事象のエネルギー分布 [23] : 最も良いパラメータの場合のスペクトルと実際の観測データを示す。

さらに図 2.20 に原子炉ニュートリノ振動パラメータの測定結果を示す。最も良いとされるパラメータは太陽ニュートリノ欠損問題の LMA 解と一致位、それ以外の太陽ニュートリノ欠損問題の解の領域を否定した。許されるパラメータ領域は

$$\begin{aligned}\tan^2\theta_{12} &= 0.56^{+0.10}_{-0.07}(\text{stat})^{+0.10}_{-0.56}(\text{syst}) \\ \Delta m_{12}^2 &= 7.58^{+0.14}_{-0.13}(\text{stat})^{+0.15}_{-0.15}(\text{syst}) \times 10^{-5} \text{eV}^2\end{aligned}\quad (2.13)$$

となる。他の太陽ニュートリノ観測実験と合わせたグローバル解析により

$$\begin{aligned}\tan^2\theta_{12} &= 0.47^{+0.06}_{-0.05} \\ \Delta m_{12}^2 &= 7.59^{+0.21}_{-0.21} \times 10^{-5} \text{eV}^2\end{aligned}\quad (2.14)$$

となり、KamLAND 実験は太陽ニュートリノ実験と比較すると特に Δm_{12}^2 の決定について支配的であった。原子炉反ニュートリノが平均 180km のところから飛来してい

ると仮定した場合の L/E 分布を図 2.21 に示す。エネルギー閾値を 0.8MeV に下げることによってニュートリノ振動の 2 つの山と 1 つの谷を確認することに成功し、ニュートリノ振動によってニュートリノ欠損が起きたことが証明されている。

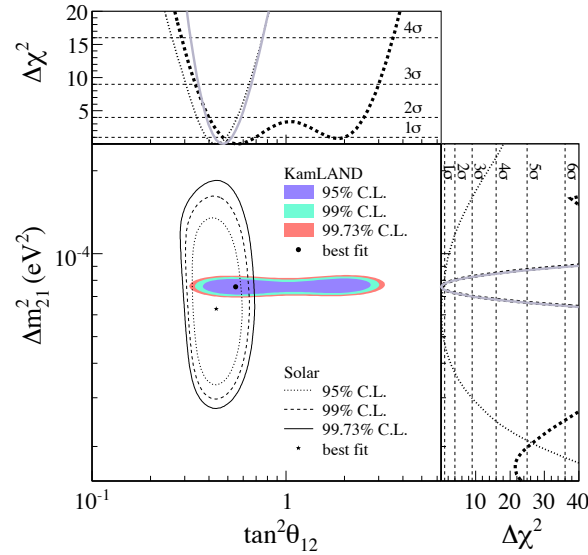


図 2.20: 原子炉ニュートリノ振動パラメータの測定 (2008 年)[23] : KamLAND 実験の結果のみを用い原子炉の運転状況も考慮して解析した、ニュートリノ振動の振動パラメータの許容領域。 $\tan^2\theta_{12} = 0.56^{+0.10}_{-0.07}(\text{stat})^{+0.10}_{-0.56}(\text{syst})$ 、 $\Delta m^2_{12} = 7.58^{+0.14}_{-0.13}(\text{stat})^{+0.15}_{-0.15}(\text{syst}) \times 10^{-5}\text{eV}^2$ と与えられる。

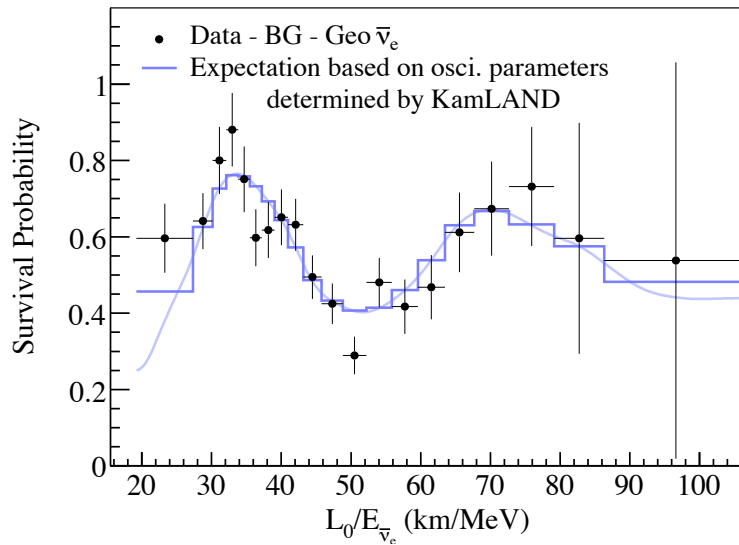


図 2.21: 反電子型ニュートリノの L/E 分布 (2008 年)[23] : ニュートリノ振動パターンにおける 2 つの山と 1 つの谷を確認した。

SONGS

ニュートリノ検出器を原子炉の運転状況の監視に用いることがIAEA(国際原子力機関)の推進を得ながら研究されている。大掛かりな設備が必要無く、直接介入しなくても原子炉の外から長期間に渡って監視出来、原子炉の運転を止める事無く運転状況を監視出来る可能性が期待されている。

SONGS1 という、アメリカ、カリフォルニアにある SONGS(San Onofre Nuclear Generation Station) の原子炉の運転状況をニュートリノ検出によって見積る実験が進められた [24]。熱出力 $3.4GW_{th}$ の2基の原子炉があり、一方の原子炉の tendon gallery と呼ばれる原子炉のコアからほど近い場所に検出器を設置することで原子炉の運転状況を直に観測出来る (図 2.22)。ターゲットとして中性子捕獲原子核 Gd を含有した液体シンチレータ 0.64 ± 0.06 トンを用い、ニュートリノ事象は $10^{17}/m^2s$ である。

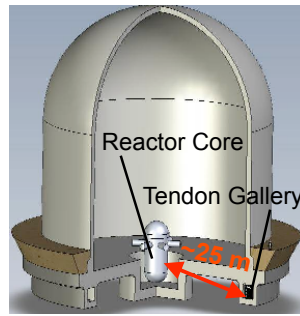


図 2.22: SONGS の検出器設置場所 [24] : 原子炉のコアから約 25m の tendon gallery に設置した。

図 2.23 に反ニュートリノイベントの測定結果を示す。左図は原子炉の運転が停止される前後の反ニュートリノイベントの観測数を1時間毎にプロットした図 (a1) と、 r_{SPRT} という統計量を5時間毎にプロットした図 (b1) である。 r_{SPRT} (sequential probability ratio test) は

$$r_{SPRT} = \log \frac{P(\mu_1, n_{event})}{P(\mu_2, n_{event})} \quad (2.15)$$

で示される値で、 $P(\mu, n_{event})$ は観測事象数 n_{event} が中心値が μ である元の分布に含まれる確率で、 μ_1 と μ_2 は異なる原子炉の出力時の観測予測事象の分布の中心を示す。この解析方法を用いると原子炉の運転が停止されたタイミングを 99% の信頼度で示すことが出来る。また右図は原子炉が 80% と 100% の出力で運転していた時の観測結果である。(a2) の 1 時間毎のプロットでは出力の変化を読み取るのは困難であるが (b2) の r_{SPRT} の 5 時間毎のプロットは 99% の信頼度で 80% の出力と 100% の出力の期間を示した。

また原子力発電の原料に用いられる ^{238}U は高速中性子を吸収して ^{239}Pu になるので ^{239}Pu の数は原子炉の運転状況によって変化する。 ^{235}U と ^{239}Pu の放出するニュートリノのエネルギー分布には違いがあるのでその変化を継続的に測定することが出来れば核燃料の構成比の変化の様子を知ることが出来る。図 2.24 は ^{235}U と ^{239}Pu のエネルギースペクトルの違いと、SONGS での測定結果である。運転停止前後で ^{239}Pu

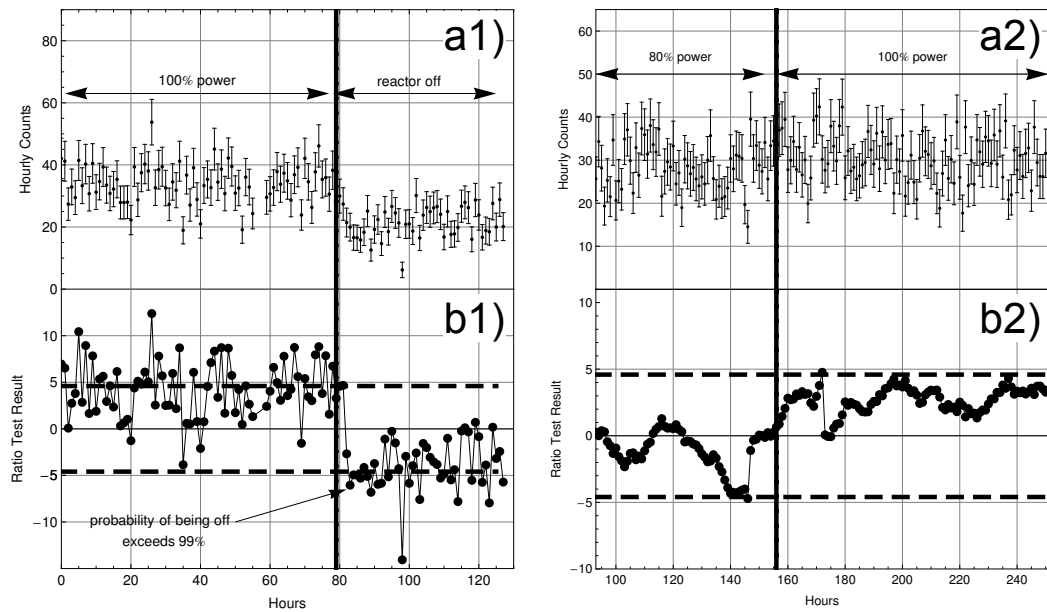


図 2.23: SONGS の測定結果 [25] : 左図は原子炉の運転が出力 100%の状態から停止される期間の測定結果で、(a1) は観測事象の 1 時間毎のプロット、(b1) は r_{SPRT} という統計量を 5 時間毎にプロットしている。右図は原子炉の出力が 80% から 100% に切り替わる期間の測定結果で同様に (a2) は観測時少数、(b2) は r_{SPRT} のプロットである。それぞれ運転状況の変化を 99% の信頼度で示す事に成功している。

を 250kg 取り除き、1.5t の新しい ^{235}U に交換したが、観測した反ニュートリノの事象数にその変化が現れているのが読み取れる。

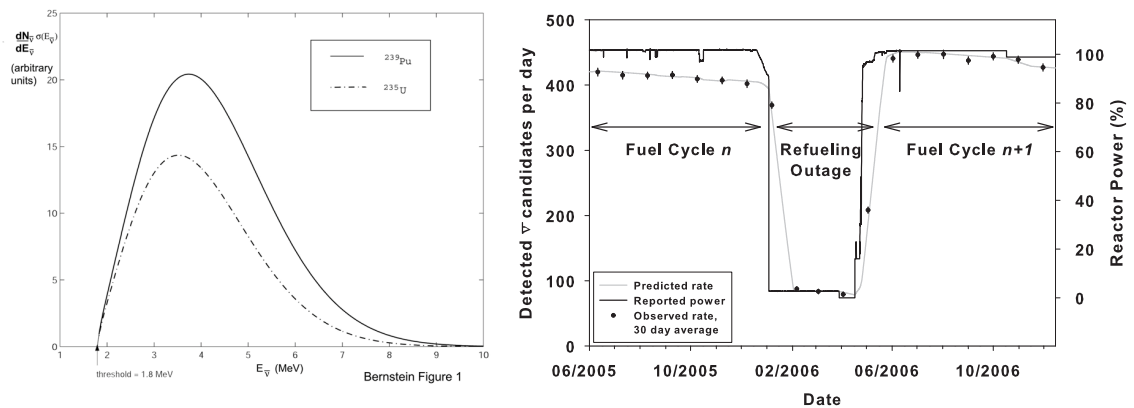


図 2.24: ^{235}U と ^{239}Pu の放出する反ニュートリノのエネルギースペクトルと SONGS での観測結果 [25] : 左図は点線で ^{235}U 、実線で ^{239}Pu 由来の反ニュートリノのエネルギースペクトルを示し、両者が異なることが分かる。左図は SONGS での観測結果で運転停止前後で ^{239}Pu を 250kg 取り除き、1.5t の新しい ^{235}U に交換したが、観測した反ニュートリノの事象数にその変化が現れているのが読み取れる。

2.3.2 到来方向測定の実用

原子炉反ニュートリノの到来方向測定が可能になった場合

- KamLAND サイズ

- － ニュートリノ振動パラメータの精密測定

現在の測定では基線長情報が測定精度の向上において難題になっている。KamLAND のようなサイズで到来方向測定が可能であればニュートリノ事象毎にどの原子炉から飛来したものなのか判断することが出来、大幅なエラーの低減が期待出来る。

- 小型サイズ

- － 原子炉モニター

上記のように原子炉反ニュートリノの測定を原子炉の運転状況の確認に用いる試みは現在でも既に行われている。しかし多くは Gd 含有液体シンチレータを用いており、中性子の拡散距離や先発信号と後発信号の時間間隔が短くイベントを他と分離し易いリチウム含有液体シンチレータであれば、更なる小型化が期待出来る。更に到来方向を観測することが出来れば、原子炉のどの場所が故障しているかという非破壊診断に用いることが出来る。X 線等を用いる非破壊診断ではある程度構造が壊れて初めて検出出来るが、人間の直接介入出来ない場所でも検出器を常設しておくことで早期に簡単に故障箇所を特定することが期待される。

CHOOZ による到来方向測定

Gd 含有液体シンチレータを用いてニュートリノ振動パラメータやニュートリノ混合角の測定を行った CHOOZ 実験は反ニュートリノの到来方向測定を解析的に行った。結果を図 2.25 に示す。Gd が放出する γ 線は反応点を決定するには最適とは言えず、僅かに到来方向への分布が見られる程度の結果となった。[26]

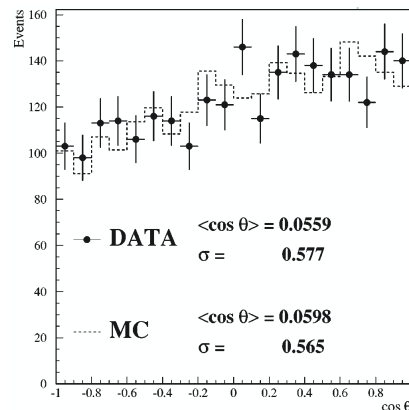


図 2.25: 反ニュートリノ到来方向に対する中性子吸収点の角度分布

第3章 検出原理

本研究では反電子型ニュートリノの到来方向を検出することが出来る液体シンチレータの開発を目指す。液体シンチレータはプソイドクメン等の有機溶媒に発光物質を溶かし込んだもので、他の検出器に比べ安価で自由に形を変えられるという利点がある。本章では液体シンチレータ基本的な性質に触れ、方向検出に必要な要請を導いた上でその検出原理を述べる。更に液体シンチレータ中で起きた反応の検出方法を述べる。

3.1 液体シンチレータによる方向検出

3.1.1 液体シンチレータ

蛍光物質の研究の歴史は古く、1937年にカルマン (Kallmann) が有機物質に紫外線を照射し生じた蛍光を肉眼で観測している。その後光電子増倍管が開発されたことで検出方法が確立し、彼らは1947年に有機溶媒中に蛍光物質を溶解したものを放射線検出器として用いることを見出した。

以下に液体シンチレータの構成物質と発光機構について述べる。[27]

構成物質

液体シンチレータの主成分は有機溶媒及び蛍光体の溶質である。その他、用途に応じて界面活性剤や添加剤を加えることもある。これらの物質の種類の選択と使用量によって液体シンチレータの特性を自在に決めることが出来る。

1. 溶媒

溶媒は放射線エネルギーを吸収して励起し、その励起エネルギーを蛍光体まで伝達する。その為

- 溶質への励起エネルギー伝導効率が良い。
一般に π 電子は移動性に富み容易に励起されるので、この電子を持つ芳香族化合物は励起エネルギー伝導率が良いとされている。
- 蛍光体の発光スペクトルに溶媒の吸収スペクトルが存在しない。(図 3.1 参照)
- 不純物混入によるクエンチング (消光作用, 付録参照) を避ける為に高純度であること。

等が要請される。図 3.2 に主な溶媒の分子構造を示す。

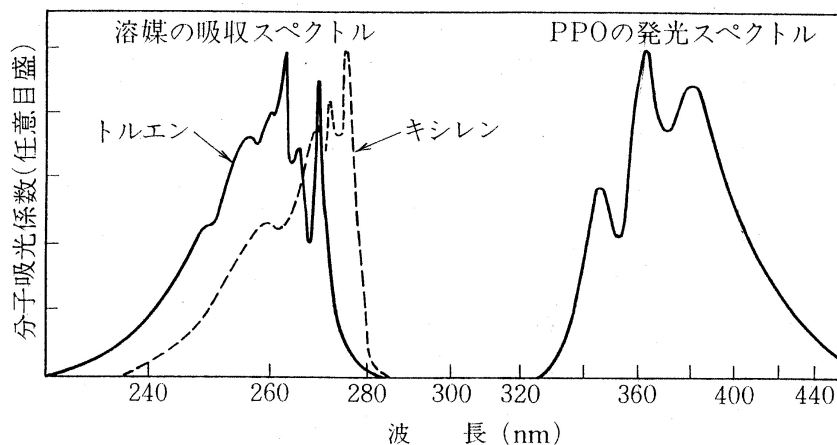


図 3.1: 溶媒 (トルエン, キシレン) の吸収スペクトルと溶質 (PPO) の発光スペクトルの波長関係 [27]

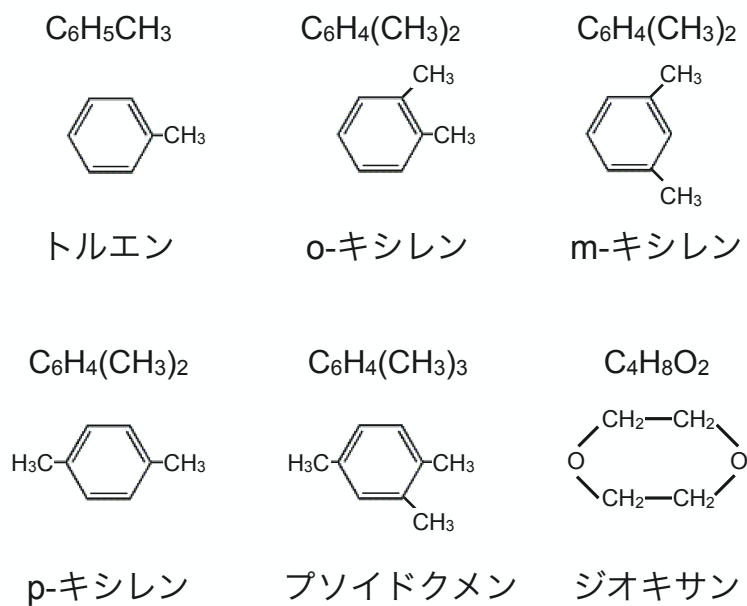


図 3.2: 主な溶媒の分子構造

2. 溶質

放射線エネルギーを光エネルギーに変換する特性を持つ物質を溶質として溶解させる。この特性は、

$$\text{蛍光量子収率} = \frac{\text{蛍光放出の分子数}}{\text{励起状態の分子数}} \quad (3.1)$$

で表せ、この蛍光量子収率が大きい物質を使用する。液体シンチレータの用途によっては波長変換体として第二溶質を加えることもあり長波長の発光スペクトルを得ることが出来る。

発光機構

液体シンチレータ中の反応では励起エネルギー源と溶質である蛍光体との間に溶媒が介在している為に発光機構が複雑化している。溶媒分子数は蛍光体分子数に比べ約1000倍程度であるため蛍光体が直接放射線エネルギーを吸収して発光する確率は極めて低く、以下のような過程を経て励起エネルギーが伝達されていく。

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

3.1.2 方向検出の原理

低エネルギーニュートリノの到来方向検出

上記の様な性質を持つ液体シンチレータ検出器は発光物質を含有している為に発光量が大きく、低エネルギーのニュートリノでも検出可能であるが到来方向の情報は得ることが出来ない。

その他のニュートリノの検出方法として水チェレンコフ検出法 (Super Kamiokande 実験 [28]、SNO 実験 [29]) が挙げられる。

$$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^- \quad (3.2)$$

の電子散乱によって放出された電子が水中を運動する際にその進行方向に放出するリング状のチェレンコフ光を観測している。媒質の屈折率を n 、粒子の速度を v とするとチェレンコフ光の進行方向と電子の運動方向との成す角度 θ は

$$\cos\theta = \frac{c}{nv} \quad (3.3)$$

と表せ、ニュートリノの到来方向を求めることができる (図 3.3)。

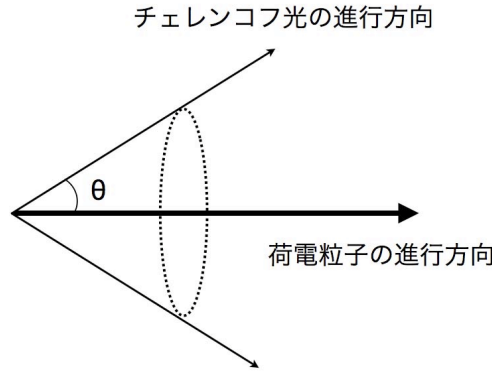


図 3.3: チェレンコフ光の進行方向

しかし液体シンチレータ法に比べて発光量が小さく (Super Kamiokande 実験は KamLAND 実験の約 100 分の 1) 比較的高いエネルギー領域にのみ感度を持つ。図 3.4 は Super Kamiokande I による太陽ニュートリノの測定結果である。5MeV から 20MeV のエネルギー領域の測定事象に対して $\cos\theta_{\text{SUN}}=1$ に明らかな分布が見られ、太陽ニュートリノの到来方向測定に成功している。

そこで本研究では低エネルギーのニュートリノに対してその到来方向を観測することが出来る検出器の開発を目指す。

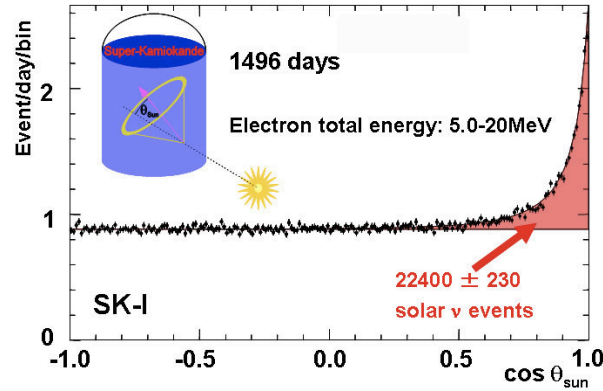


図 3.4: SK-I による測定事象の太陽方向角度分布?? : 5-20MeV のエネルギー領域の 1496 日分のデータによる解析結果であり、太陽と検出器を結ぶベクトルと再構成された事象の成す角 $\cos\theta_{\text{SUN}}$ の分布を示す。また実線はシミュレーションによる best-fit、黒点は観測データを示し、ほぼフラットな部分はバックグラウンド事象、 $\cos\theta_{\text{SUN}}=1$ 付近のピークが太陽ニュートリノ事象を示す。

検出方法

液体シンチレータによる反ニュートリノの検出には式 (3.4) に示す逆 β 崩壊を利用し、先発信号と後発信号による同時遅延計測を行う。

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n \quad (3.4)$$

反ニュートリノは液体シンチレータ中の水素と反応し陽電子と中性子を放出する。低エネルギーの反応においては陽電子はほぼ等方的に放出されて液体シンチレータ中の電子と対消滅を起こし、その際 0.511MeV の 2 本の γ 線を放出する。これらを足し合わせたエネルギーが先発信号となる。反ニュートリノの到来方向の情報を保持して反跳された中性子は様々に散乱されて熱化し、先発信号から平均 200 μ sec 後に陽子に捕獲されて重水素となる。その際に放出する 2.2MeV の γ 線が後発信号となる。図 3.5 に示した反ニュートリノの到来方向と中性子が放出される方向の成す角 θ_n は、反ニュートリノのエネルギーが 3MeV 以下の低エネルギーのとき 35° 以下である。(3.1.3 参照)

従って陽電子発生点と中性子吸収点を結ぶベクトルと反ニュートリノの到来方向には相関があるので、この二点を精度良く測定することによって反ニュートリノの到来方向を測定出来る。

しかし現存する液体シンチレータでは

1. 熱化の過程で中性子が 5cm 程度拡散し位置情報がぼやける。
2. 後発信号である 2.2MeV の γ 線が約 40cm 移動し中性子吸収点が決定出来ない。

という理由で方向検出は不可能である。

従って反ニュートリノの到来方向検出をする為には、

1. 中性子が位置情報を失う前に捕獲する。
2. 中性子吸収点を特定出来る反応を起こす。

という性質を持つ原子核を新たに液体シンチレータ中に導入すれば良い。

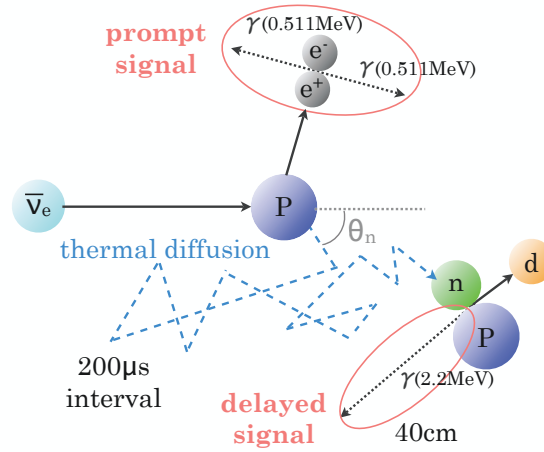


図 3.5: 液体シンチレータ中の反応過程

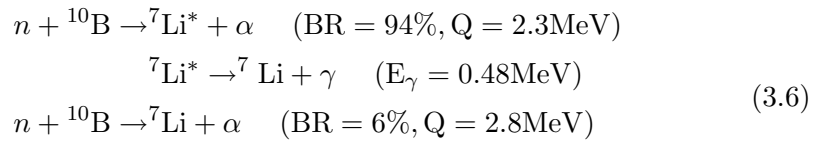
中性子捕獲原子核

現存する液体シンチレータにおいて後発信号となる陽子の中性子捕獲反応の反応断面積は 0.3barn である。これに比べて反応断面積が大きい原子核の候補として以下の 3 つが挙げられる。反応断面積の詳細な値を表 3.1 に示す。

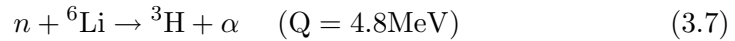
1. Gd



2. ^{10}B



3. ^6Li



Gd は反応断面積が大きく、1 回の反応で平均で 3 本の γ 線が放出される。それらの合計のエネルギーは約 8MeV であり比較的高いエネルギーを持つので他の放射性物質等からのバックグラウンドと分離し易いという利点を持つが、 γ 線が液体シンチレータ中を長距離移動してしまうので中性子吸収点を特定出来ず到来方向測定には向かない。

中性子を捕獲して液体シンチレータ中で殆ど移動出来ない α 線を放出する反応を起こす原子核として ^{10}B と ^6Li が挙げられる。 ^{10}B は中性子捕獲断面積が大きく中性子の拡散を 2.0cm 程度に抑えることが出来るが、反応の 94%は 0.48MeV の γ 線を併発するので反応点を特定しにくいと考えられる。 α 線と ^3H という、どちらも液体シンチレータ中を殆ど移動出来ない粒子を放出する ^6Li が最も有効な原子核であると予測出来る。次章でシミュレーションによって最適性を確認する。

中性子捕獲原子核	自然存在比 [%]	反応断面積 [barn]
Gd	-	49700
¹⁵² Gd	0.2	735
¹⁵⁴ Gd	2.1	85
¹⁵⁵ Gd	14.8	61100
¹⁵⁶ Gd	20.6	1.5
¹⁵⁷ Gd	15.7	259000
¹⁵⁸ Gd	24.8	2.2
¹⁶⁰ Gd	21.8	0.77
B	-	767
¹⁰ B	20	3835
¹¹ B	80	0.0055
Li	-	70.5
⁶ Li	7.5	940
⁷ Li	92.5	0.0454

表 3.1: 中性子捕獲原子核の反応断面積 [31] : 現存する液体シンチレータでの後発信号となる (n,p) 反応に於ける陽子の反応断面積は 0.3barn である。

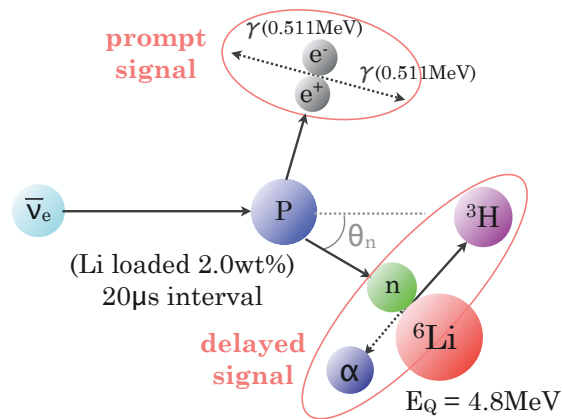


図 3.6: リチウム含有液体シンチレータ中の反応過程

3.1.3 逆 β 崩壊の角度分布のエネルギー依存性

3.1.2節で述べたように、電子型反ニュートリノの到来方向は逆 β 崩壊反応 $\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$ において陽電子発生点と中性子吸収点を結ぶベクトルと相関があることを利用して検出する。そこで重要なパラメータである陽電子と中性子の放出角度のエネルギー依存性について理論的背景を述べる。

陽電子

逆 β 崩壊反応における微分散乱断面積は以下の式 3.8 の様に書ける [42]。

$$\left(\frac{d\sigma(E_{\bar{\nu}_e})}{d\cos\theta_e} \right)^{(1)} = \frac{\sigma_0}{2} \left[(f^2 + 3g^2) + (f^2 - g^2)v_e^{(1)}\cos\theta_e \right] E_e^{(1)} p_e^{(1)} - \frac{\sigma_0}{2} \left[\frac{\Gamma}{M} \right] E_e^{(0)} p_e^{(0)} \quad (3.8)$$

$E_{\bar{\nu}_e}$ は反電子型ニュートリノのエネルギー、 $v_e^{(i)}$ 、 $E_e^{(i)}$ 、 $p_e^{(i)}$ は陽電子の速度、エネルギー、運動量の第 i 次近似 ($i = 0, 1$) を表し、以下のように書ける。

$$E_e^{(1)} = E_e^{(0)} \left[1 - \frac{E_{\bar{\nu}_e}}{M} (1 - v_e^{(0)}\cos\theta_e) \right] - \frac{y^2}{M} \quad (3.9)$$

$$E_e^{(0)} = E_{\bar{\nu}_e} - \Delta \quad (\Delta = M_n - M_p) \quad (3.10)$$

また、

$$y^2 = \frac{\Delta^2 - m_e^2}{2} \quad (3.11)$$

$$p_e^{(i)} = \sqrt{(E_e^{(i)})^2 - m_e^2} \quad (i = 0, 1) \quad (3.12)$$

$$v_e^{(i)} = p_e^{(i)} / E_e^{(i)} \quad (i = 0, 1) \quad (3.13)$$

$$f = 1.0 \quad (\text{ベクトル結合定数}) \quad (3.14)$$

$$g = 1.26 \quad (\text{軸性ベクトル結合定数}) \quad (3.15)$$

$$\sigma_0 = \frac{G_F^2 \cos^2\theta_c}{\pi} (1 + \delta_{inner}^{rad}) \quad (3.16)$$

$$\begin{aligned} \Gamma = & 2(f + f_2)g \left[(2E_e^{(0)} + \Delta)(1 - v_e^{(0)}\cos\theta_e - \frac{m_e^2}{E_e^{(0)}}) \right. \\ & + (f^2 + g^2) \left[\Delta(1 + v_e^{(0)}\cos\theta_e) + \frac{m_e^2}{E_e^{(0)}} \right] \\ & + (f^2 + 3g^2) \left[(E_e^{(0)} + \Delta) \left(1 - \frac{1}{v_e^{(0)}}\cos\theta_e - \Delta \right) \right] \\ & \left. + (f^2 - g^2) \left[(E_e^{(0)} + \Delta) \left(1 - \frac{1}{v_e^{(0)}}\cos\theta_e - \Delta \right) \right] v_e^{(0)}\cos\theta_e \right] \end{aligned} \quad (3.17)$$

ここで、 σ_0 は内部輻射補正 $\delta_{inner}^{rad}(=0.024)$ を含む規格化定数、 G_F はフェルミ結合定数で $\frac{G_F}{(\hbar c^3)}=1.16637 \times 10^{-5} \text{GeV}^{-2}$ 、 $\cos^2 \theta_c = 0.97$ 、 $f_2 = \mu_p - \mu_n (=3.706)$ 、 M は平均核子質量である。エネルギー閾値 $E_{\bar{\nu}_e}^{thr}$ は

$$E_{\bar{\nu}_e}^{thr} = \frac{(M_n + m_e)^2 - M_p^2}{2M_p} = 1.806 \text{MeV} \quad (3.18)$$

と表せる。

以上の式を用いて逆 β 崩壊の全散乱断面積 σ_{tot} を計算すると図 3.7 の上図となり、発生陽電子の $\bar{\nu}_e$ 進行方向に対する角度の $E_{\bar{\nu}_e}$ 毎の平均値 $\langle \cos \theta_e \rangle$ の分布は下図の様に計算出来る。

数 MeV 付近の低エネルギーのニュートリノとの反応では、陽電子はニュートリノの進行方向に対して最大で 100° 程度後方に放出されるものが多いが、13MeV 付近で反転し高エネルギーになる程前方に寄って放出されることが分かる。

本研究で検出対称としているのは低エネルギー反電子型ニュートリノであるので、陽電子放出方向の偏りは無視出来る程小さくほぼ等方的に放出されていると考えて良い。

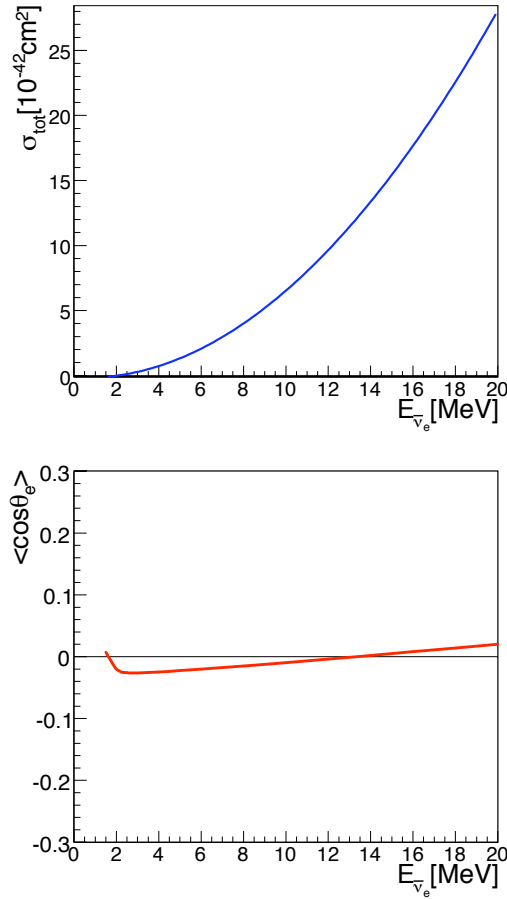


図 3.7: 逆 β 崩壊の全散乱断面積と発生陽電子の平均角度分布

中性子

上記の様に、あるニュートリノのエネルギー $E_{\bar{\nu}_e}$ の時の陽電子のエネルギー E_e 、放出角 $\cos\theta_n$ を計算により求めることが出来る。更に逆 β 崩壊反応にエネルギーと運動量の保存則を適用して中性子のエネルギー E_n 、反跳角 $\cos\theta_n$ を決定することが出来る。

図 3.9 に入射ニュートリノのエネルギーと陽電子、中性子の反跳角の相関を示す。入射ニュートリノのエネルギーが高くなる程、中性子反跳角は大きくなる。つまり ${}^6\text{Li}$ によって中性子を吸収して反応点を特定出来ても、中性子の反跳角が大きいとニュートリノの到来方向の情報の信頼性は薄れてしまう。しかし原子炉反ニュートリノを始めとする 3.0MeV 程度の低エネルギーニュートリノの場合、中性子反跳角は 35° 以下に抑えることが出来、中性子吸収点と陽電子発生点を特定出来ればニュートリノの到来方向を高精度で特定出来る。

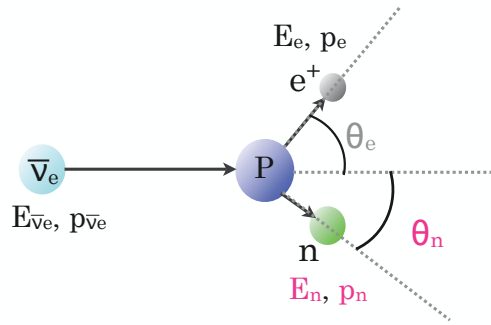


図 3.8: 逆 β 崩壊反応の概念図：エネルギー、運動量保存則により中性子のエネルギー、運動量、反跳角を求めることが出来る。

ニュートリノのエネルギーと中性子の運動エネルギー、反跳角の相関を図 3.10 に示す。3.0MeV 程度の低エネルギーにおいては中性子の運動エネルギーは 100keV 以下である。放出された中性子は液体シンチレータ中で様々に散乱して熱平衡に達するまで減速し、熱化中性子となる。それぞれの弾性散乱において進行方向に対する散乱される角度 $\theta_{\text{scat.}}$ の平均値は

$$\langle \cos\theta_{\text{scat.}} \rangle = \frac{2}{3A} \quad (3.19)$$

と表せる [43]。A は中性子が散乱される原子の原子番号である。1MeV 以下では炭素原子よりも水素原子の方が散乱断面積が大きく、液体シンチレータ中では主として水素原子に散乱される。よって式 3.19 で $A=1$ であるので、中性子の最初に放出された方向からのずれは小さいと考えられる。

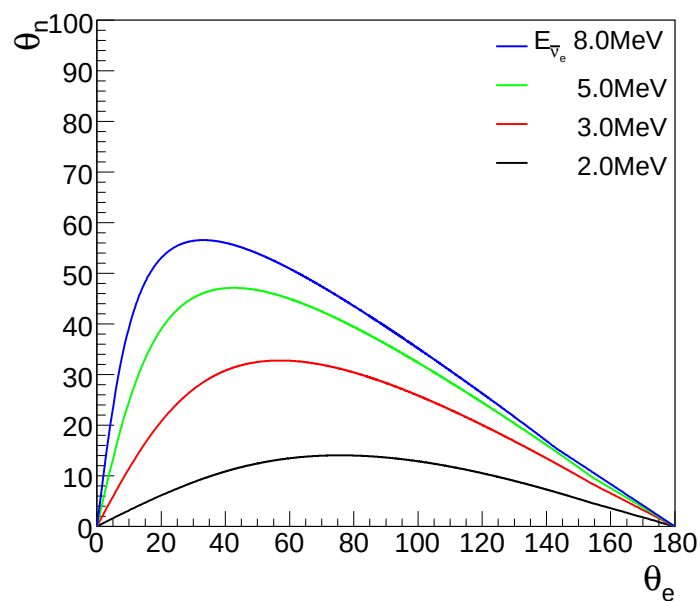


図 3.9: ニュートリノのエネルギーと陽電子、中性子の反跳角の相関：3MeV 以下の時中性子の反跳角は 35° 以下に抑えることが出来る。

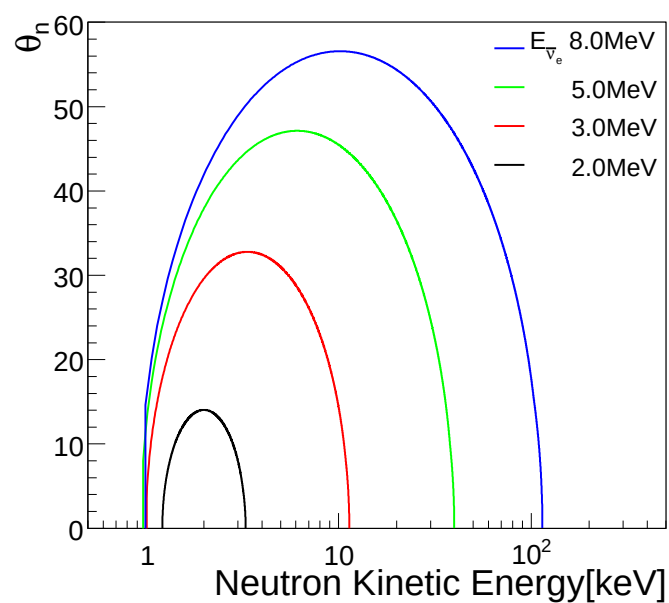


図 3.10: ニュートリノのエネルギーと中性子の運動エネルギー、反跳角の相関：3MeV 以下の時中性子の運動エネルギーは十数 keV 以下である。

3.2 イメージング検出器

リチウム含有液体シンチレータにおいて、反ニュートリノの到来方向測定に必要な陽電子発生点と中性子吸収点の検出には、中性子の反跳距離を識別出来る位置分解能 1cm 以上での測定が要求される。PMT タイミングを用いた位置分解能は約 10cm で到来方向測定には不十分であるので、光学レンズと位置検出素子を組み合わせた発光位置の直接測定が可能なイメージング検出器の開発によって要求精度を目指す。

3.2.1 SCITIC

SCITIC(SCIntillating Track Image Camera)[44] は液体シンチレータの発光を光学レンズによって結像させ IIT(像増倍管) と CCD カメラの組み合わせで検出する手法を用いた検出器であり、ハイペロン核子散乱検出の為に飛程検出を目的に研究された。強いシンチレーション光を発し、光学レンズの選択で倍率を自由に調整出来、更にトリガータイミングのシグナルを用いることで条件に合うイベントを選択し易い、等の利点がある。図 3.11 に検出器の概要を示す。図 3.12 は SCITIC の性能試験時に行われた KEK の 12GeV 陽電子加速器からのビームを撮像した結果である。寿命の短いハイペロンの生成、散乱を飛程検出によってとらえることに成功している。

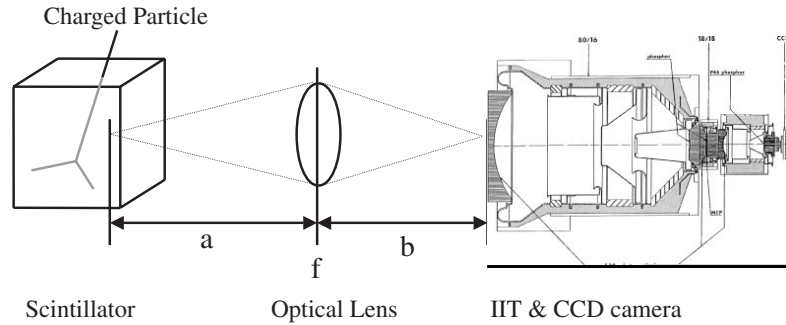


図 3.11: SCITIC[44]

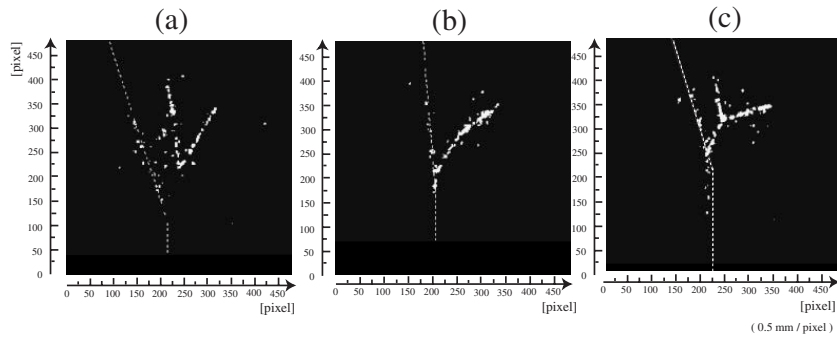


図 3.12: SCITIC を用いた実験結果 [44] : (a) Λ^0 生成、(b) Σ^+ 生成、(c) Σ^+ 散乱

3.2.2 プロトタイプイメージング検出器

本研究では広角かつ光被写界深度の光学レンズ設計や微弱光の検出が要求され、既存の検出手法を応用した本研究の要請を満たす検出器の開発が行われている [45]。

図 3.13 はプロトタイプイメージング検出器の概要である。プラスチックシンチレータの発光を PMT で検出し、それをトリガー信号とし CCD で撮像している。本研究で要求されるような微弱光に対応出来るような、PMT との同期、且つノイズに対して最適化されたトリガーの開発が必要である。図 3.14 はこの検出器を用い、ミュオンのトラックとコバルト線源からのイベントを撮像した結果である。

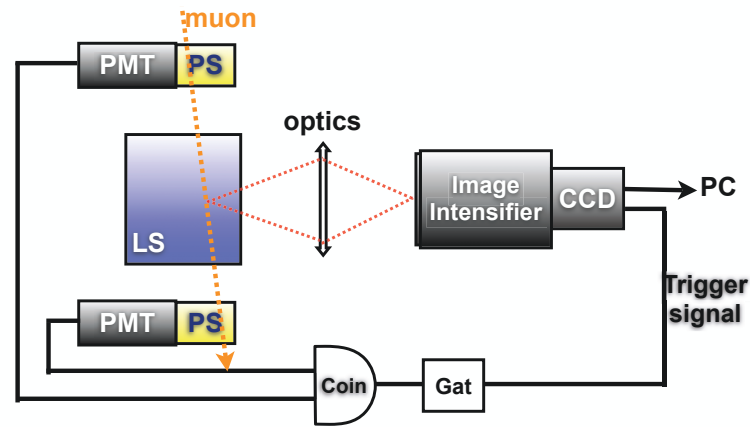


図 3.13: プロトタイプイメージング検出器

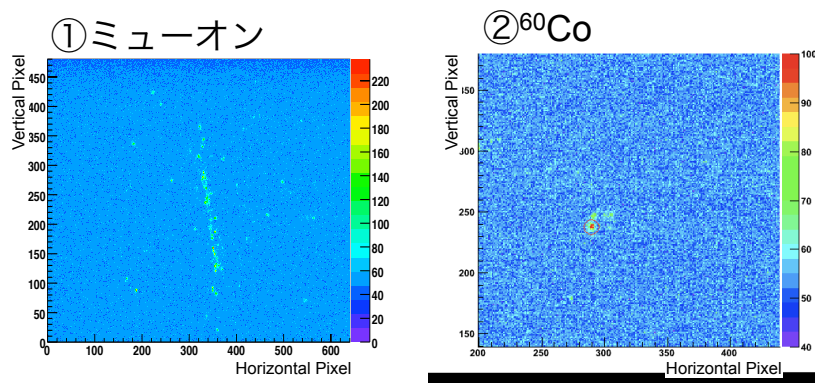


図 3.14: CCD カメラによるミュオントラックとコバルト線源の撮像

第4章 シミュレーションによる性能評価

リチウム含有液体シンチレータの応用は様々に考えられるが、最も近い将来計画として原子炉反ニュートリノの検出が挙げられる。本章では原子炉反ニュートリノのエネルギー領域のイベントに対して、到来方向の検出には中性子捕獲原子核として ${}^6\text{Li}$ を含有させるのが最適である事を示し、更にリチウム含有液体シンチレータ中の反応の様子をシミュレーションによって見積もる。

4.1 イベントリストの作成

3.1.3 節で詳しく述べたように、逆 β 崩壊反応の角度分布は反ニュートリノのエネルギーに依存している。つまり原子炉反ニュートリノのエネルギーにより陽電子と中性子の反跳角、エネルギーの分配がある分布に従って決定される。この過程を考慮し以下の手順でイベントリストを作成した。

1. ある反ニュートリノのエネルギー $E_{\bar{\nu}_e}$ における逆 β 崩壊反応の反応断面積の分布を式 3.8 に従って計算する。(図 4.1)
2. 陽電子についてエネルギー E_e 、放出角 θ_e を求め、逆 β 崩壊反応に運動量、エネルギー保存則を適用して中性子のエネルギー E_n 、運動エネルギー T_n 反跳角 θ_n を求める。
3. 1, 2 の結果を用い、ある $E_{\bar{\nu}_e}$ の時の E_e 、 θ_e 、 T_n 、 θ_n のイベントリストを作成する。
4. 原子炉反ニュートリノのエネルギー分布 (図 4.2) に従うように 3 の各エネルギー毎のイベントリストから選択するイベント数を決め、最終的なイベントリストを作成する。

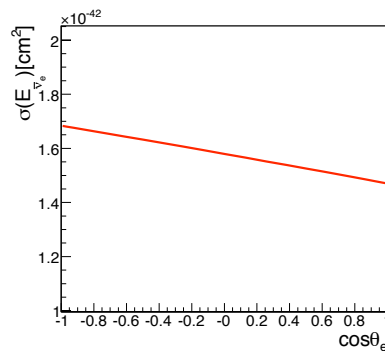


図 4.1: $E_{\bar{\nu}_e}=5.0\text{MeV}$ のときの反応断面積の陽電子放出角による分布：陽電子は $\bar{\nu}_e$ の進行方向に対して低エネルギーでは後方に、高エネルギーでは前方に多く放出される。

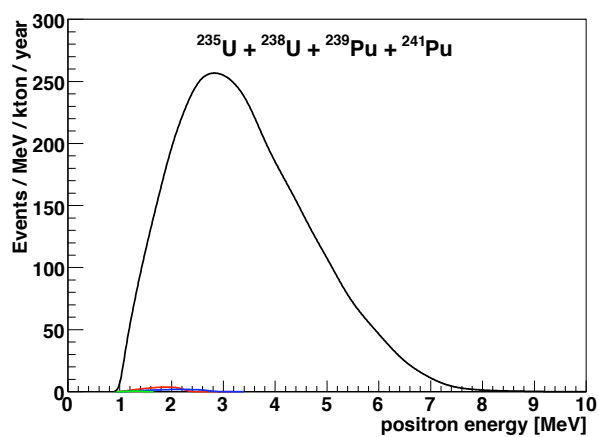


図 4.2: 原子炉反ニュートリノのエネルギー分布 [46]

図 4.3 に最終的なイベントリストの原子炉反ニュートリノのエネルギー分布から求めた中性子の運動エネルギーと反跳角の相関を示す。中性子の運動エネルギーは 100keV 以下、反跳角は 55° 以下であることが分かる。

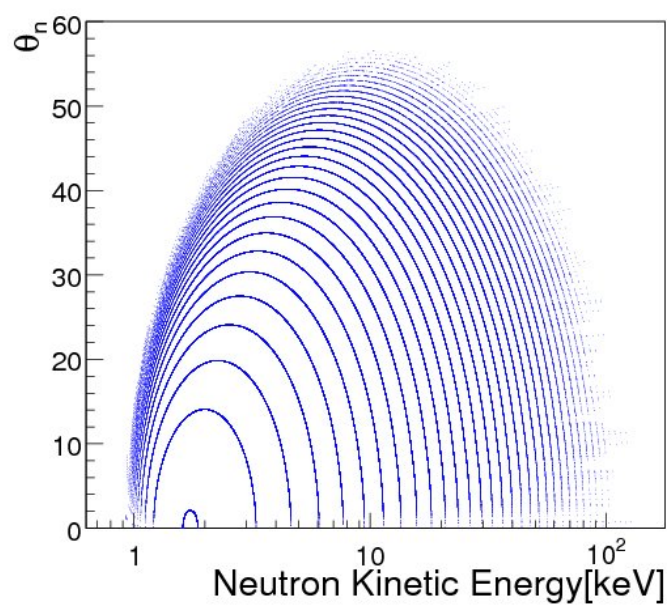


図 4.3: 原子炉反ニュートリノのエネルギー分布から求めた中性子の運動エネルギーと反跳角の相関：中性子の運動エネルギーは 100keV 以下、反跳角は 55° 以下であった。

4.2 シミュレーション

作成したイベントリストを用い、Geant4¹ [41] を用いたモンテカルロシミュレーションによって見積もった。

4.2.1 陽電子の移動距離

逆 β 崩壊反応 $\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$ において先発信号となる陽電子の液体シンチレータ中での振る舞いを見積もる。図4.4は反ニュートリノと陽子の反応によって放出された陽電子の液体シンチレータ中の移動距離 R_{e^+} を示す。全イベントのについて平均移動距離は3.8mmと計算され、陽電子は液体シンチレータ中を殆ど移動せずに対消滅を起こすことが確認された。つまり中性子発生点と陽電子反応点はほぼ一致しているので、シミュレーションによって発生させた中性子の位置を先発信号の場所であると考えて良い。

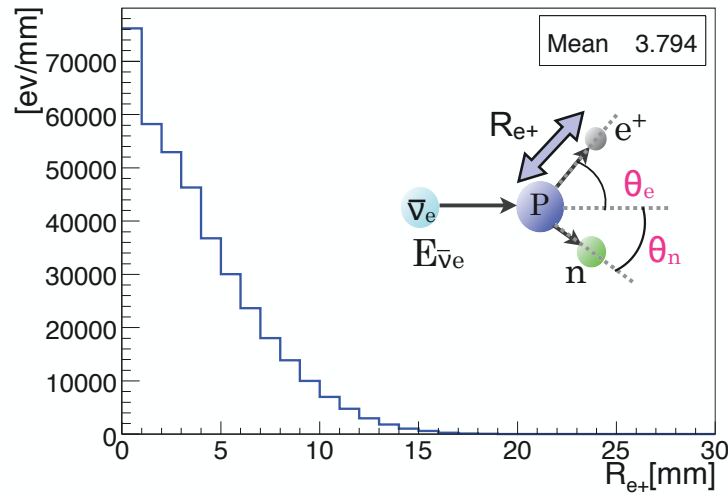


図 4.4: 陽電子の移動距離：平均移動距離は3.8mmと計算された

4.2.2 中性子捕獲原子核の選択

3.1.2節で液体シンチレータに含有させる中性子捕獲原子核の候補として ^{10}B と ^6Li を挙げたが、 ^{10}B は中性子吸収反応の94%は0.48MeVの γ 線を併発するので中性子吸収点を特定しにくく、中性子を吸収して α 線と ^3H を放出する ^6Li が最適であると予測した。ここで実際にどのような反応が起き、予測の正当性をシミュレーションによって確認する。

比較対象としてKamLANDの液体シンチレータの構成(プソイドクメン20%、ノルマルパラフィン80%、PPO1.36g/l)に従った液体シンチレータを用い、中性子捕獲原子核としてそれぞれ ^6Li 0.15wt%、 ^{10}B 1.0wt%添加したものと比較する。

¹素粒子が物質中で起こす複雑な振る舞いや反応を正確にシミュレーションする大規模ソフトウェア。物理プロセスや検出器の構造、データの生成や保存、可視化等の多くのツールキットから構成される。

中性子捕獲点までの距離

図 4.5 に液体シンチレータ中で中性子が発生した点から捕獲される点までの距離 R_n の分布を示す。中性子捕獲反応断面積が最も大きい ^{10}B (3835barn) 含有液体シンチレータでは散乱される回数が少なく、 R_n の平均値も最も短い 3.0cm に低減出来ている。また ^6Li (940barn) 含有液体シンチレータでも中性子捕獲原子核を添加していないものと比較して R_n の平均値は 3 分の 1 程度に抑えられている。

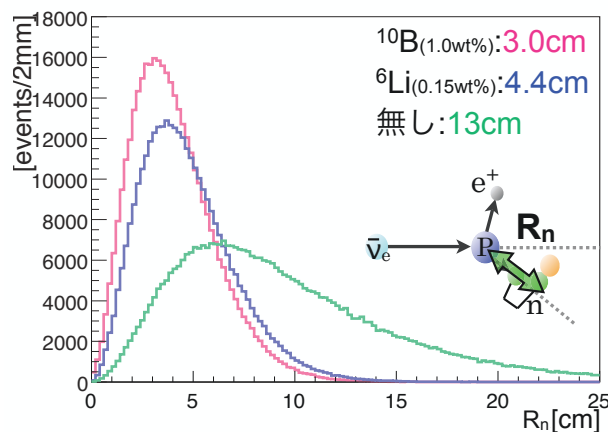


図 4.5: 中性子捕獲点までの距離 R_n : ^{10}B (1.0wt%) をピンク、 ^6Li (0.15wt%) を青、中性子捕獲原子核を添加しない場合を緑で示す。以下の図でも同様。

再構成反応点までの距離

図 4.6 に中性子発生点から捕獲された位置を再構成した点までの距離 R の分布を示す。上記のように R_n は ^{10}B 含有液体シンチレータが最も短かったが、 α 線放出時に併発する γ 線による影響が大きく位置決定精度は極端に低下している。それに比較して ^6Li 含有液体シンチレータの場合、中性子を捕獲して放出するのが液体シンチレータ中で殆ど移動出来ない α 線であるので、再構成反応点までの距離 R の平均値も R_n の場合と全く変化せず、精度良く反応点が特定出来ることが分かる。

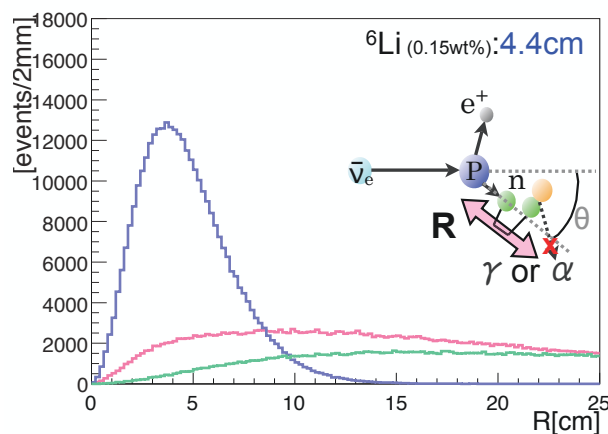


図 4.6: 再構成反応点までの距離 R

中性子散乱・捕獲点分布

図 4.7 に中性子が捕獲されるまでに液体シンチレータ中で散乱される点と、捕獲後に放出する γ 又は α 線による位置再構成点の分布を示す。左図はそれらの点の位置を表し、右図は $X = \pm 15\text{cm}$ の範囲における点の分布を示している。尚、 X 軸方向に反ニュートリノが到来している場合を想定し、原点から X 軸に対して角度 θ_n の方向に中性子が放出されると仮定している。

^6Li 含有液体シンチレータでは中性子が捕獲されるまでの平均距離は ^{10}B の場合よりも長い、中性子捕獲点の決定精度が良いのでこれらの点の分布は直径 12cm 程度の範囲に収まっている。それに比べ、 ^{10}B 含有液体シンチレータの場合や中性子捕獲原子核を添加しない場合では広範囲に渡って点の分布が見られる。

よって中性子の散乱を低減し、中性子捕獲点が精度良く決定出来る ^6Li を液体シンチレータ中に導入することが、現存液体シンチレータの問題点を克服するのに最も有効な解決策であると考えられる。

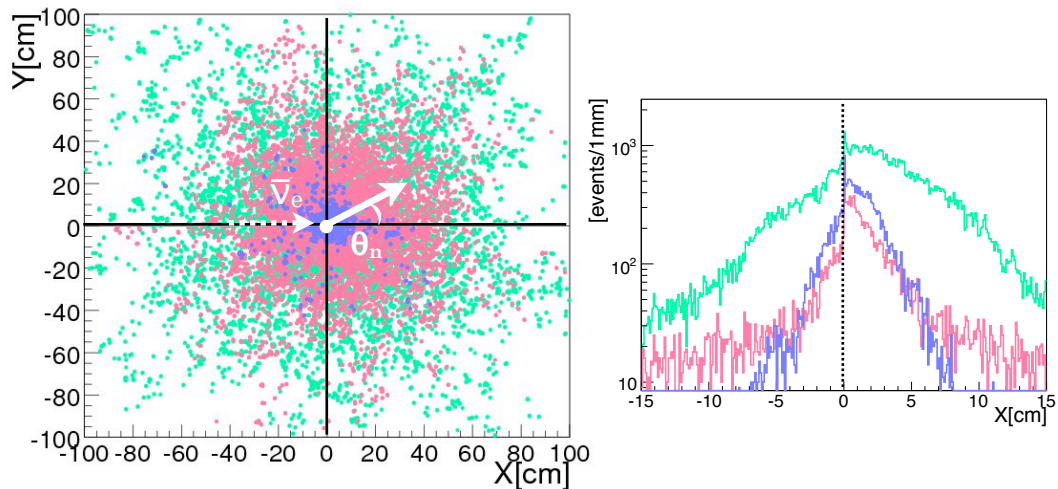


図 4.7: 中性子散乱・捕獲点分布：左図はそれぞれの点の位置を示し、右図は $X = \pm 15\text{cm}$ の範囲における点の分布を示す。 ^6Li 含有液体シンチレータでは中性子の散乱を低減し、中性子捕獲点を精度良く決定出来るので直径 12cm 程度の範囲に殆どの点がおさまっていることが分かる。

角度分解能

以上の結果を踏まえ、反ニュートリノの到来方向に対する角度分解能を見積もる。

図 4.8 に反ニュートリノの到来方向に対する中性子吸収点の角度分布を示す。上記の様に ^{10}B 含有液体シンチレータでは中性子吸収反応のうち 95%が放出する γ 線が液体シンチレータ中を長距離移動する為反応点がぼやけ、未添加の液体シンチレータに比べてもあまり効果が見られない。それに対して赤で示した ^6Li 含有液体シンチレータでは反ニュートリノの到来方向に対して前方方向に明らかな分布を見る事が出来る。

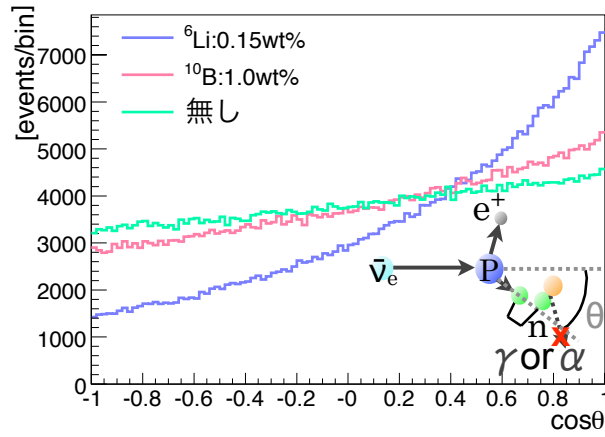
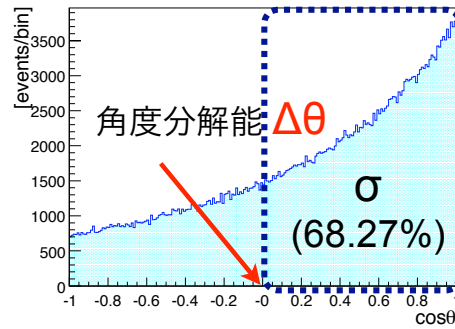


図 4.8: 反ニュートリノ到来方向に対する中性子吸収点の角度分布

図 4.9 に示す様に、全イベント数の 68%つまり 1σ となる角度を角度分解能 $\Delta\theta$ とする。それぞれの場合について角度分解能を計算すると表 4.1 の様になり、 ${}^6\text{Li}$ が最も良い結果が得られることが確認出来る。

例) ${}^6\text{Li}$ 0.15wt%

図 4.9: 角度分解能 $\Delta\theta$ の定義: ${}^6\text{Li}$ 含有液体シンチレータの場合を例に取る。

	$\Delta\theta$
${}^6\text{Li}$ 0.15wt%	90.1°
${}^{10}\text{B}$ 1.0wt%	114.1°
中性子捕獲原子核無し	118.6°

表 4.1: 角度分解能

4.2.3 リチウム含有液体シンチレータの性能評価

${}^6\text{Li}$ を液体シンチレータに溶かし込む利点は、中性子が拡散して位置情報を失う前に捕獲し液体シンチレータ中を長距離移動できない α 線を放出して反応点を決定することにある。液体シンチレータの性能を評価する上で重要なパラメータである先発信号・後発信号の時間間隔と角度分解能について論じる。

先発信号・後発信号の時間間隔

${}^6\text{Li}$ を含有していない液体シンチレータでは先発信号・後発信号の時間間隔は平均 $200\mu\text{sec}$ である。この間に中性子が熱化して様々に散乱されることで反ニュートリノの到来方向の情報を失う。

100keV の一定エネルギーの中性子をリチウム含有液体シンチレータ中で発生させ、 ${}^6\text{Li}$ に捕獲されるまでの時間つまり、先発信号・後発信号の時間間隔 ΔT を計算した結果を図 4.10 に示す。目標値とした $2.0\text{wt}\%$ 付近では約 $20\mu\text{sec}$ であり、十分の一に抑えられることが分かる。低濃度では急激に長くなっているが、濃度をあげても劇的な変化はみられない。

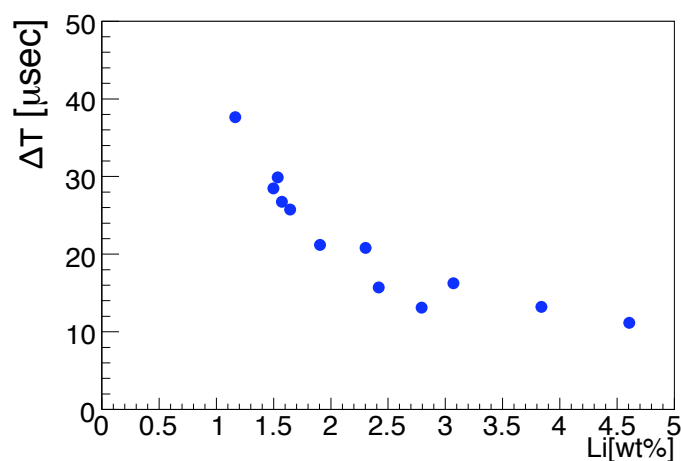


図 4.10: 先発信号・後発信号の時間間隔のリチウム濃度による変化

角度分解能

図 4.11 にリチウム濃度による角度分解能の変化を示す。リチウム濃度を 5 倍にしても角度分解能は 4% 程度の上昇にとどまっていて、濃度をあげることによって劇的に角度分解能が良くなることは無いことが読み取れる。言い換えれば目標量程度でも十分に ${}^6\text{Li}$ を含有させた意義はあると考えられる。また 4.2.2 節で示したように中性子捕獲原子核を含有していない液体シンチレータでは $\Delta\theta=118.6^\circ$ となった。

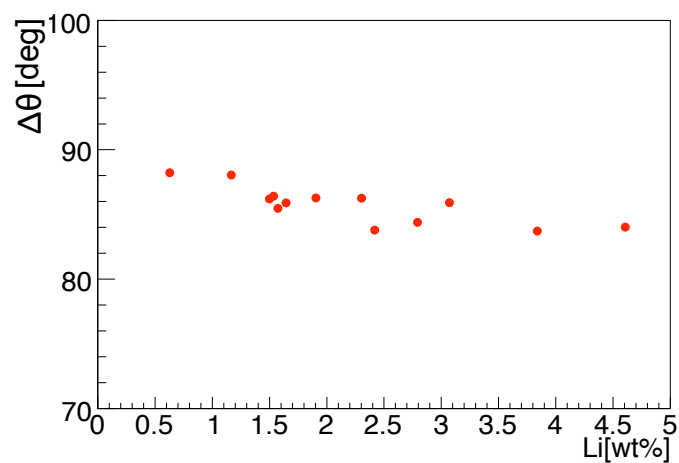


図 4.11: 角度分解能のリチウム濃度による変化

第5章 リチウム含有液体シンチレータの作成

反ニュートリノの到来方向を検出する為には中性子捕獲原子核として ${}^6\text{Li}$ を含有させた液体シンチレータを新たに開発することが必要である。本章では液体シンチレータの開発に当たり歴史的経緯に触れた後、本研究での溶解目標量をシミュレーション結果等をもとにして決定する。更にリチウム化合物の特徴的な性質を踏まえて実際の作成方法を述べる。

5.1 リチウム含有液体シンチレータの使用例

本研究の様に反ニュートリノの到来方向検出を目的にしてリチウム含有液体シンチレータを用いた例は過去に無い。良い中性子捕獲原子核としての性質を利用して検出器の開発、実験が行われてきた。

5.1.1 NE320

1960年代には液体シンチレータが中性子検出器として有効であることが研究されるようになった。中でも ${}^6\text{Li}$ は中性子を吸収して4.8MeVの運動エネルギー持つ α 線とトリチウムのペアを放出することから、中性子吸収イベントとして良く認識できる検出器としての利用が期待されていた。

しかしリチウム化合物を液体シンチレータ中に導入すると発光量が低下し、光減衰長も短くなるという難点があり、 100cm^3 以上の検出器を作成出来なかった。そこでこれらの点の改良を目的に開発されたのがNE320である。

良い光出力物質であり波形弁別に優れていることが知られているプソイドクメン(構造式は図3.2参照)を用い表5.1の様な性能を持つリチウム含有液体シンチレータの開発に成功している[32]。しかし液体シンチレータ中にどのようにして ${}^6\text{Li}$ を含有させたのかは不明であり、現在は販売も中止されている。

液体シンチレータ	NE320	NE224
${}^6\text{Li}$ 含有量	0.15wt%	0
減衰長	$260 \pm 30\text{cm}$	500cm
発光量	$31\% \pm 5\%$	80%

表 5.1: NE320 と NE224 の性能比較。NE224 はプソイドクメンベースの液体シンチレータでこれまで主な中性子検出器として用いられていた。減衰長は波長 400nm における値、発光量は結晶アントラセンシンチレータの発光量を 100%としている。[32]

5.1.2 Bugey 実験

上記の ^6Li 含有液体シンチレータ、NE320 を用いて行われた原子炉反ニュートリノの検出実験である。2800MW の熱出力の原子炉の近郊に、それぞれ炉心から 15m、40m、95m の距離に体積 600L のセル型の検出器を設置しニュートリノ振動パラメターの測定を目指した (図 5.1)。基線長を短くするために原子炉近くの地下にある 5m 角程度のスペースに検出器を置く必要が生じ、比較的小さな検出器で反ニュートリノイベントを時間的、空間的に良い精度で検出しなければならなかった。そこで ^6Li 含有液体シンチレータの特性である

- 中性子捕獲時間を $200\mu\text{sec}$ から $30\mu\text{sec}$ に短縮
- 中性子吸収点の約 40cm の不定性を無くすことで陽電子発生点から中性子吸収点までの距離を約 6cm の精度で決定
- PSD によって中性子捕獲後に発生する α 線を識別

を生かし大幅なバックグラウンド除去を試みた。

しかし ^6Li の化学的不安定性によりセル毎にその割合は違うものの、全体的に一日に約 1% 程度発光量が減少し検出器の性能を長期的に維持することが出来なかった [34]。約 2 年間のデータ収集の後、1995 年に実験を終了している。

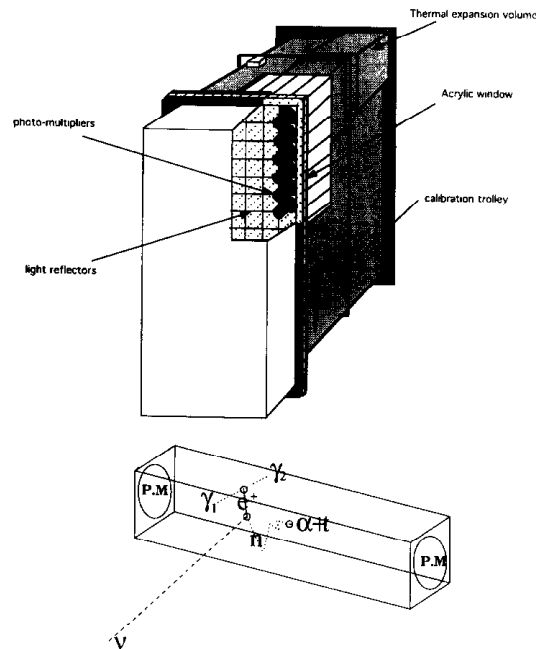


図 5.1: Bugey 実験検出器 [33]

5.2 リチウムの性質

リチウムは原子番号3のアルカリ金属元素ある。同じアルカリ金属のナトリウムやカリウムと比べて反応性は劣るが、空气中で容易に酸化され金属単体として存在するのは難しい。このため単体で用いられるよりも化合物として軽量合金や強力な還元剤として用いられることが多い。主な性質を表5.2に示す。

Li	
原子量	6.941 u
密度	0.535 g/cm ³
融点	180.49 °C
沸点	1340 °C
酸化数	1 (強塩基性酸化物)
結晶構造	体心立方構造

表 5.2: リチウムの性質

リチウムの使用例

- 工業用グリース

水酸化リチウムを添加し自動車、農機具、機械工具等の潤滑剤として用いられている。

- 電池

イオン化傾向が大きく、酸化還元電位は全原子中で最も低い -3.0440MeV であるので電池に用いると大きな起電力を得る事が出来る。また重量が軽いので重量当たりのエネルギー密度が大きいという利点がある。

- 核融合発電

核融合発電の原料として重水素と三重水素(トリチウム)が必要である。重水素は 1m^3 の海水から 33g 得られ供給量は十分であるが、三重水素は主として ^6Li が中性子を捕獲して α 線と三重水素を放出する反応から得られる。同じ反応を利用して水素爆弾を作成出来るため、リチウムは石油以上に厳しい制約資源となっている。

${}^6\text{Li}$

上記の様に ${}^6\text{Li}$ は核融合反応や水素爆弾の原料として用いられる為、簡単に得ることは出来ない。自然存在比は ${}^7\text{Li}$ が 92.5% であるのに対して、 ${}^6\text{Li}$ は 7.5% である。主な保有国としてロシアや中国が知られている。

物理的、化学的方法を用いて ${}^6\text{Li}$ を分離、濃縮する技術が研究されてきた。同位体間の僅かな質量差を利用した遠心分離法、イオン交換樹脂法、キレート樹脂法、レーザー法、熱拡散法、電気泳動法、蒸留法等である。また微生物の生体反応を利用して同位体を分離する方法が開発中であり、他の物理的、化学的手法に比べて 50 倍以上良い分離効果が得られている [35]。

5.3 開発目標の設定

ここでは Geant4 を用いたモンテカルロシミュレーションを行いリチウム含有量を決定し、減衰長、発光量などの物理的性質の目標性能を決定する。

5.3.1 リチウム含有量の決定

開発条件として以下の二点を課すことにする。

1. リチウムを濃縮せずに用いる

5.2 で述べたように ${}^6\text{Li}$ は現状では入手しにくい物質であるため、入手し易いリチウム化合物を用いて自然存在比 7.5% の ${}^6\text{Li}$ を必要量含有させなければならない。

2. 逆 β 崩壊で発生する中性子の 90% 程度が ${}^6\text{Li}$ に捕獲される

中性子吸収点を精度よく決定する為に α 線を放出する ${}^6\text{Li}$ による捕獲反応が高確率で起こらなければならない。

リチウム濃度を変えシミュレーション結果を 5.2 に示す。但しリチウム捕獲割合は以下の式 5.1 で定義した。

$$\text{リチウム捕獲割合} [\%] = \frac{{}^6\text{Li に捕獲されたイベント数}}{\text{生成イベント数}} \quad (5.1)$$

リチウム捕獲割合はリチウム含有量が多ければ多い程増加傾向にあることは明白だが、2.0wt% を下回ると急激に減少していることが分かる。また条件の 2 つ目に挙げたリチウム捕獲割合が 90% 付近にあるのもリチウム含有量が 2.0wt% 近辺である。

よって本研究のリチウム含有量の目標量は最も効率が良い 2.0wt% とする。

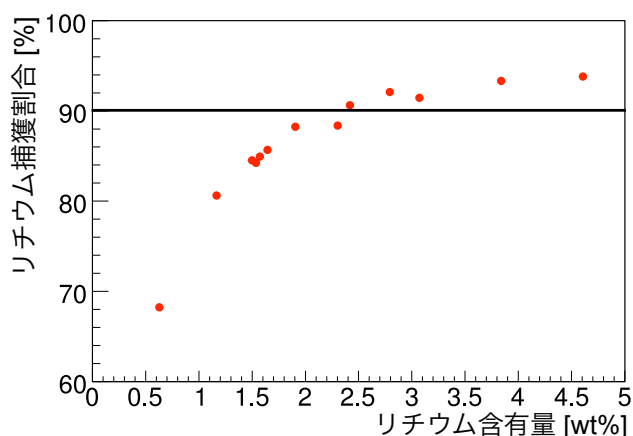


図 5.2: リチウム含有量の決定：横軸は ${}^6\text{Li}$ の自然存在比 7.5%を考慮したリチウムの含有量である。

5.3.2 物理的性質

発光量、減衰長の目標値を表 5.3 に示す。5.1.1 節で述べたが、一般にリチウム化合物を液体シンチレータに溶解させるとその濃度の増加に伴い発光量が減少してしまう。これはリチウム化合物がエネルギー伝達機構を持たない為であると考えられる。しかし発光量の減少は検出器開発においても大きな制限を与えることになるので、KamLAND で用いられている液体シンチレータと同程度以上の発光量を目指す。原子炉非破壊診断に用いるような小型検出器の開発を念頭に置いた場合、減衰長は 70cm を目標にしているが将来的に大型検出器に応用出来るような性能の実現を目指す。

	Li 含有 LS	KamLAND LS
Li 含有量	2.0 wt%	-
発光量	$\geq 8000\text{photons/MeV}$	8000photons/MeV
減衰長	$\geq 70\text{cm}$	10m

表 5.3: リチウム含有液体シンチレータの目標性能：減衰長は波長 400nm における値である。

5.4 リチウム含有液体シンチレータの作成 (1) ～ 有機溶媒への溶解

5.3 節で求めた目標性能を持ったリチウム含有液体シンチレータの作成を目指す。先ず開発の概要を述べる。

1. 有機溶媒にリチウム化合物を溶解することが出来る組み合わせを探す

一般に液体シンチレータは有機溶媒と必要な溶質で構成されるので、先ず本研究の要請を満たすことが出来る有機溶媒とリチウム化合物の組み合わせを探した。この段階で

- (a) 殆どのリチウム化合物は有機溶媒に溶けにくい
- (b) 水に溶解し易いリチウム化合物が多い

ということが判明し次の段階へと方向転換することにした。

2. リチウム化合物の親水性を利用し、界面活性剤を加えて水溶液と有機溶媒を混合する

界面活性剤は分子内に親水基と親油基が存在し、水と油を均一に混ぜ合わせる性質を持つ。有機溶媒に直接溶解することが出来ないリチウム化合物でも水溶液化すれば界面活性剤により有機溶媒と混合することが出来ると考えた。

以下にそれぞれの詳細を述べていく。

先ず一般的な液体シンチレータの作成方法である有機溶媒へ直接リチウム化合物を溶解する方法を試した。以下の様な本研究で要請される有機溶媒とリチウム化合物の条件を元にしていくつかの物質に絞り、実際に作成した。

- リチウム化合物

- － 危険物を避ける
- － 溶解したときに色が付かない¹

- 有機溶媒

- － 引火点が高い
- － 無色透明
- － 励起エネルギーを伝達し易いベンゼン環を持つ

¹液体が着色すると発光量が低下することが知られている。

5.4.1 リチウムアセチルアセトナート

図 5.3 に形状と構造式を、表 5.4 に性質を示す。上記の条件で様々なリチウム化合物を検討した結果、唯一有機溶媒に可溶という記述が見つかった化合物である。更に白色粉末という形状も条件に合致している。有機溶媒 50g(プソイドクメン、1-オクタノール、エタノール)、リチウムアセチルアセトナートを 1g 混合した結果を表 5.5 と図 5.4 に示す。



図 5.3: リチウムアセチルアセトナートの形状と構造式

構造式	$\text{Li}(\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2)$
分子量 (Li 割合)	106.05g/mol(6.5%)
融点	250°C
形状	白色粉末
溶解性	有機溶媒に可溶

表 5.4: リチウムアセチルアセトナートの性質

一般的に用いられている有機溶媒であるプソイドクメンには全く溶解しなかった。唯一溶解したエタノールも少量である上に黄色に着色してしまい、これらの組み合わせでは目標性能は得られなかった。これらの結果から

- プソイドクメンのような有機溶媒よりもアルコールの方が溶解しやすい
- 直鎖が長い物質よりも短い物質の方に溶解しやすい

という考察が得られた。

溶媒 (50g)			結果		
物質名	分子式	分子量 [g/mol]	直後	70°C に加熱	24 時間後
プソイドクメン	C ₉ H ₁₂	120.196	×	×	×
1-オクタノール	C ₈ H ₁₈ O	130.2	×	△	△
エタノール	C ₂ H ₆ O	46.069	△	△	○

表 5.5: リチウムアセチルアセトナートの有機溶媒への溶解結果：× は溶解しない、△ は少量溶解するが溶け残る、○ は全て溶解する、をそれぞれ示す。

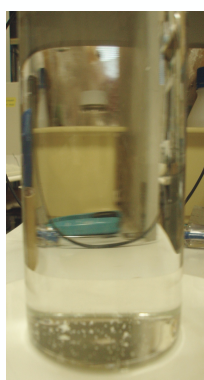
1-オクタノール

①70°C に加熱



溶け残る

②24時間後



溶け残る

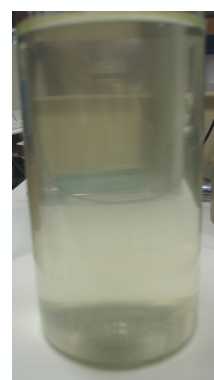
エタノール

①70°C に加熱



溶け残る

②24時間後



溶解するが着色

図 5.4: リチウムアセチルアセトナートの有機溶媒への溶解結果

5.4.2 安息香酸リチウム

図 5.5 に形状と構造式を、表 5.6 に性質を示す。有機溶媒に可溶で要請条件に合致する物質が見当たらず、リチウムアセチルアセトナートの結果を踏まえエタノールに可溶という安息香酸リチウムと様々な有機溶媒の組み合わせを実験した。それぞれの有機溶媒は 50g、安息香酸は 1g である。結果を表 5.7 と図 5.6 に示す。



図 5.5: 安息香酸リチウムの形状と構造式

構造式	$\text{C}_6\text{H}_5\text{COOLi}$
分子量 (Li 割合)	128.06g/mol(5.4%)
融点	300°C 以上
形状	白色粉末
溶解性	水、エタノールに可溶

表 5.6: 安息香酸リチウムの性質

様々な構造を持つ有機溶媒のうち、完全に溶解することができたものは直鎖が短いメタノール、少量残ったが溶解出来たものはヒドロキシル基を 2 つ持つエチレングリコールであった。この 2 つについて更に安息香酸リチウムを加えたところ

- メタノール

安息香酸リチウムを加えるとすぐに溶解して無色透明液体になる。溶質の合計が 5.02g になったところで析出し始めた。

- エチレングリコール

溶媒中で白色粉末が小さな固まりになって分散し、時間が経つにつれてその大きさが小さくなり最終的に無色透明液体になる (図 5.7 参照)。10.2g 加えたところで析出し始めた。

以上よりエチレングリコールと安息香酸リチウムの組み合わせが最も多くリチウム化合物を溶解できた組み合わせである。

No.	溶媒 (50g)		結果	
	物質名	特徴	直後	3 時間後
1	シクロヘキサン	脂環式	×	×
2	メチルナフタレン	高分子	×	×
3	1-オクタノール	長い直鎖	×	×
4	メタノール		○	○
5	1-プロパノール	短い直鎖	×	×
6	ブチルアルコール		×	×
7	エチレングリコール	ヒドロキシル基が2つ	△	○

表 5.7: 安息香酸リチウムの有機溶媒への溶解結果：×は溶解しない、△は少量溶解するが溶け残る、○は全て溶解する、をそれぞれ示す。各番号は図 5.6 の番号に対応する。

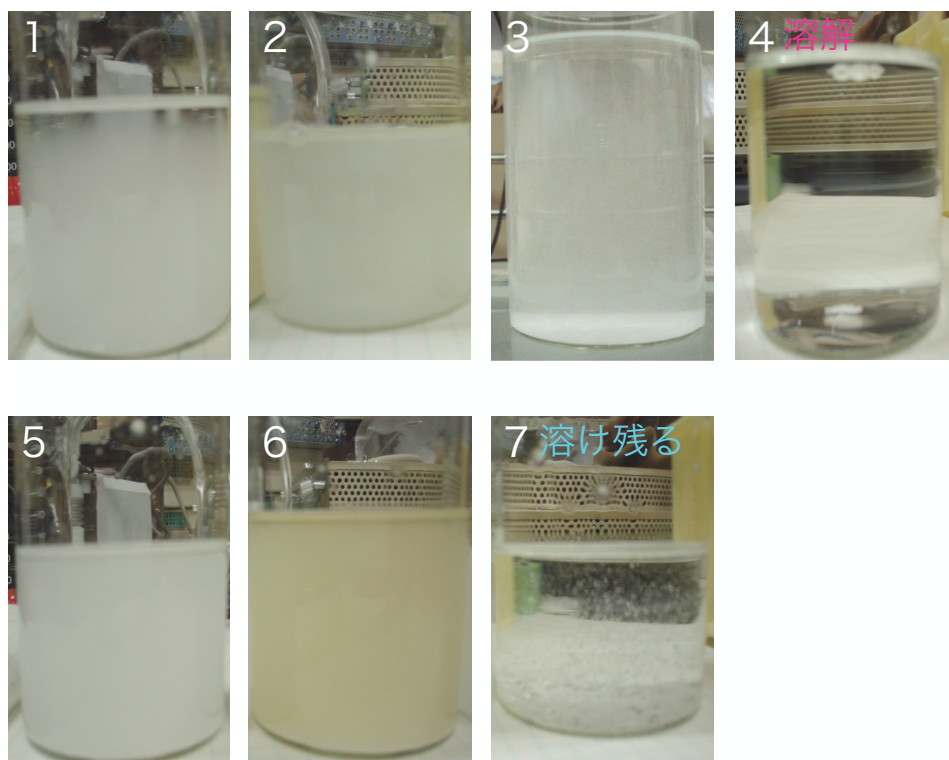


図 5.6: 安息香酸リチウムの有機溶媒への溶解結果

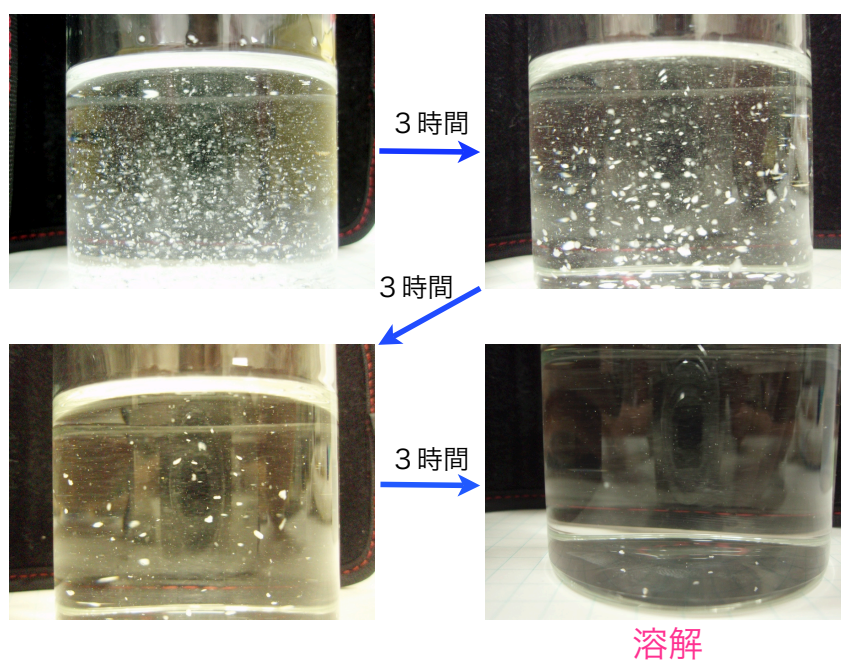


図 5.7: 安息香酸リチウムのエチレングリコールへの溶解

5.4.3 まとめ

ここで有機溶媒にリチウム化合物を直接溶解する方法の結果をまとめる。殆どのリチウム化合物は有機溶媒には溶けにくく最も良い結果が得られた組み合わせは、安息香酸リチウムとエチレングリコールの組み合わせであった。

エチレングリコールの性質を一般的な液体シンチレータに用いられているプソイドクメンと比較して表 5.8 に示す。無色透明な液体で主に合成繊維、耐寒性冷却剤、電解コンデンサー用ペースト、医薬、界面活性剤など幅広く用いられている。引火点に関しては問題は無いが、粘性が高いので液体シンチレータとして用いた場合に発光伝達にどのように影響するのか考察が必要である。

表 5.9 でエチレングリコールと安息香酸リチウムの組み合わせで作成した液体シンチレータのリチウム含有量と目標量とを比較する。析出してしまう前の最高濃度まで溶解したが、目標量の 2.0wt% の約半分の 1.11wt% にとどまった。更に発光物質である PPO 加えて発光量や透過率といった物理的性質を確認した結果を第 6 章に示す。

	エチレングリコール	プソイドクメン
化学式又は構造式	HOCH ₂ CH ₂ OH	C ₆ H ₃ (CH ₃) ₃
分子量 [g/mol]	62.07	120.2
密度 [g/cm ³] (at 15°C)	1.11	0.88
沸点 [°C] (at 1 atm)	197.8	168.9
融点 [°C] (at 1 atm)	-12.6	-43.8
引火点 [°C]	111.1	45.5
発火点 [°C]	410	487
屈折率 (at 15°C)	1.433	1.499
粘性率 [cP] (at 16°C)	25.66	1.154

表 5.8: エチレングリコールとプソイドクメンの性質の比較 [36]

	Li[wt%]	⁶ Li[wt%]
エチレングリコール + 安息香酸リチウム	1.11	0.083
目標量	2.0	0.15

表 5.9: 自作液体シンチレータと目標値の比較

5.5 リチウム含有液体シンチレータの作成 (2) ～ 界面活性剤の使用

有機溶媒に直接リチウム化合物を溶解する方法ではあまり良い結果が得られず、リチウム化合物の親水性を利用した方法に方向転換を試みる。

5.5.1 リチウム化合物の選択

リチウム化合物の溶解度を表 5.10 に示す。

水に対して最も良く溶解するのは臭化リチウムで 25°C において 100g の水に 186.8g 溶解する。その際のリチウム量も 14.94g であり最もリチウム含有量が多い物質である。以下に考察点を挙げる。

- 形状は白色の物質であり水溶液も無色透明である。
- 臭素の中性子捕獲反応の反応断面積は 6.9barn である。

方向検出を目的とした液体シンチレータとして用いる際に ^6Li によって中性子吸収点を精度よく決定する必要があるが、リチウムと同量存在することになる臭素の中性子捕獲断面積は ^6Li の 940barn に比べて十分小さいので中性子吸収点の決定に対して障害にはならないと考えられる。

その他の物質は色が付いてること (LiI は黄褐色結晶) や、常温で扱いにくい危険物であること (LiOH 水溶液は金属を腐食して水素ガスを発生し、空気と混合して引火爆発の危険性がある) 等の理由で除外できる。

よって臭化リチウム水溶液を用いて液体シンチレータを作成することにする。

分子式	式量 [g/mol]	溶解度 (at 25°C) [g/100g 水]	溶解 Li 量 (at 25°C) [g/100g 水]
LiBr	86.80	186.8	14.94
LiI	133.80	167.9	8.71
LiNO_3	68.90	84.5	8.51
Li_2CrO_4	129.90	96.4	5.15
LiOH	24.0	12.5	3.61
Li_2SO_4	109.95	34.4	2.17
Li_2CO_3	73.89	1.29	0.12

表 5.10: リチウム化合物の溶解度 [37]

5.5.2 飽和臭化リチウム水溶液の作成

液体シンチレータ中のリチウム濃度の目標量、2.0wt% を達成するには出来るだけ高濃度の臭化リチウム水溶液の作成が不可欠である。臭化リチウムは吸湿性が強いので、臭化リチウム一水和物の状態の方が無水物よりも 15 分の 1 程度の価格で市販されている。低コストで液体シンチレータを作成する為に臭化リチウム一水和物を用いて飽和水溶液を作成することにする。図 5.8 に形状を示す。



図 5.8: 臭化リチウム一水和物の形状

溶解度には温度依存性があり、作成環境や検出器の設置環境を考慮すると 15°C 程度における溶解度を想定すればよいと考えられる。実験室で用いる 150ml サイズのバイアルで作成しやすい量である、水 50ml に対する臭化リチウム一水和物の必要量を図 5.9 に示す。水 50g に対し 160.53g の臭化リチウム一水和物を加えれば飽和水溶液が得られることが分かる。実際に作成したところ、水 (市販の超純水を用いた) に臭化リチウム一水和物を一度に加えても溶解熱を発生しながら約 5 分で全て溶解して無色透明の液体となった。その後 4ヶ月程度室温で放置したが析出することもなく溶解直後の状態を保持していた。

作成した臭化リチウムの飽和水溶液を用いて目標リチウム含有量である 2.0wt% の液体シンチレータを作成することを考えると、含水率² 15%まで水を含有出来れば良いことになる。

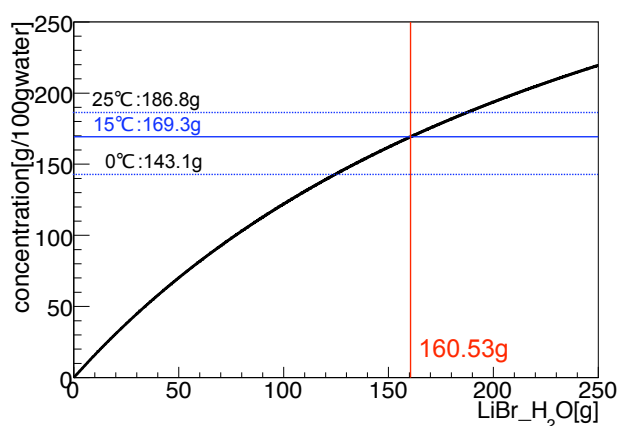


図 5.9: 飽和臭化リチウム水溶液の作成：横軸は水 50g に対する飽和水溶液を作成するのに必要な臭化リチウム一水和物の質量を示す。

²液体シンチレータの全質量に占める水の割合を含水率と定義する。

5.5.3 シンチレータカクテル

水溶液を界面活性剤を用いて有機溶媒と混合する方法の可能性を探る為に、先ず市販のシンチレータカクテルを用いてリチウム含有液体シンチレータの作成を試みた。

液体シンチレータに目的の試料を溶かし込んで測定する手法は、生化学、農学、環境化学、医学等の様々な分野で盛んに行われている。水溶性試料、油溶性試料に関わらず含有する事ができ、低バックグラウンド、高計数効率で測定可能な安全性の高いシンチレーションカウンターが市販されている。その詳しい構成物質や混合割合は明らかにされていないが、基本的には有機溶媒と界面活性剤、発光物質で構成されており、シンチレータカクテルと呼ばれている。本研究の要請である含水率 15% を達成可能であるかどうか実験を行った。

以下の 4 つのシンチレータカクテル (全て同仁化学社製) を入手し、これらのうち Scintisol 500 の温度と含水率による状態の変化を 5.10 に示す。水を加えていくと透明な状態から、分離状態を経てゲル化する。このゲル化状態でも無色透明を維持出来ればシンチレータとしてある程度の性能は得られるが本研究の要請には透過率の点から合致せず、分離する前の透明な状態でリチウム含有目標量を達成しなければならない。この Scintisol 500 は本研究の目標量である含水率 15% のときも透明な状態を維持していることが読み取れる。

- Scintisol EX-H (キシレン、非イオン性界面活性剤ベース)
- Scintisol 500 (キシレン、非イオン性界面活性剤ベース)
- Scintisol AL-1 (トルエン、キシレンベース)
- Scintisol ALX-2 (ジオキサン、ナフタレンベース)

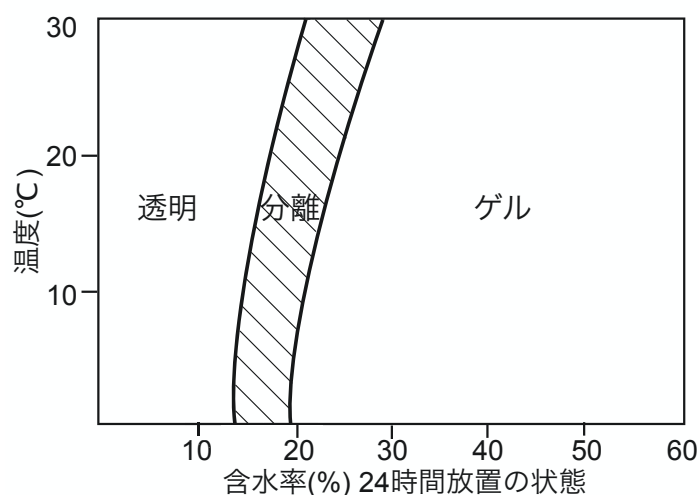


図 5.10: Scintisol 500 の温度と含水率による状態の変化 [38]

これらのシンチレータカクテルを用いて水を含有出来ることが確認出来たものに対して、更に飽和臭化リチウム水溶液を加えた。結果を表 5.11 に示す。

水のみの場合 15%以上含有できたものは2種類あった。水がシンチレータカクテル中で細かい固まりに分離し時間が経つにつれてその大きさが小さくなり、最後には無色透明な液体になった (図 5.11)。

また臭化リチウム水溶液の場合は含有出来る水の量が3分の1以下に減少している。界面活性剤はアルカリ性の物質に対してはその性能を十分発揮出来ないことが分かっているが、臭化リチウム水溶液の液性を測ってみたところ PH=9.2 と弱アルカリ性であった。そこで希硝酸を加えて臭化リチウム水溶液の液性が PH=7.0 となる様に調製したものを加えてみた。その結果、若干含有量を増加させることが出来たが一週間程度時間が経つと黄色に変色してしまい、安定性が保てなかった。

この様にして市販のシンチレータカクテルを用いてリチウム化合物の親水性を利用した方法を実践したところ、リチウムを液体シンチレータ中に導入出来る方法であることは確かめれた。しかしリチウム含有量が目標値の 2.0wt% には届かない点、最も多量にリチウムを含有することが出来た Scintisol 500 は現在は販売が中止されている点、また実用化し大量に作成するときにコスト的に有利である点等の理由で、全て自作のリチウム含有液体シンチレータの作成方法の開発を目指す。

	水 [wt%]	LiBr 水溶液		液性調製後の LiBr 水溶液	
		水 [wt%]	Li[wt%]	水 [wt%]	Li[wt%]
Scintisol EX - H	15.1	4.6	0.61	4.8	0.64
Scintisol 500	18.3	6.0	0.80	6.1	0.81
Scintisol AL - 1	< 1	-	-	-	-
Scintisol ALX - 2	分離	-	-	-	-

表 5.11: シンチレータカクテルの実験結果

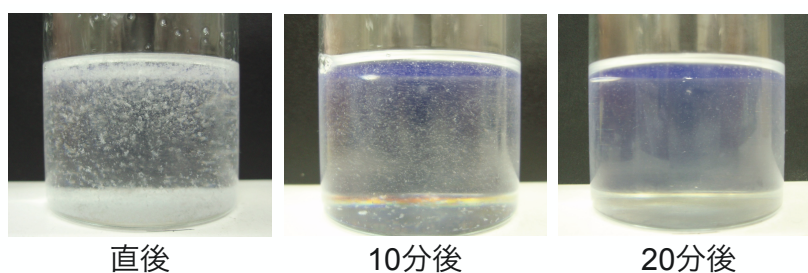


図 5.11: 臭化リチウム水溶液のシンチレータカクテルへの溶解

5.5.4 界面活性剤の選択と混合比の最適化

全て自作で高性能の液体シンチレータを作成する為に最適な界面活性剤の種類とその混合比を考察する。

界面活性剤

界面活性剤とは一分子中に親水基と親油基を持った物質の総称で親水性物質と親油性物質を均質化することが出来る。非極性溶媒中では親水基を内側に、親油基を外側にして親水性物質を取り囲んでミセルと呼ばれる集団を形成し、これが溶媒中に分散することで均質化する。以下に界面活性剤に関する概要を述べる [39]。

- 種類

水に溶解した時の解離状態の違いで大きく2種類に分けることが出来る。

1. イオン性界面活性剤

水中でイオン解離し、界面活性作用を示す部分の性質で以下の3つの型に分類出来る。

- － 陽イオン型 (カチオン)
- － 陰イオン型 (アニオン)
- － 両性型：液性がアルカリ性で陽イオン、酸性で陰イオンが界面活性作用を示す

2. 非イオン性界面活性剤 (ノニオン)

イオン解離しないで-OH基や-O-結合が親水基、アルキル基が親油基となる。

- エマルションと型

界面活性剤の働きによって液体が液体に溶けていることをエマルション (乳剤) と言い、以下の2種類に分類出来る。O/W型に油を加えていくと粘度が増して内相である油の濃度が上昇し、74.02%を超えたところで内相と外相が逆転してW/O型になる。これを転相と呼ぶ。

1. W/O型：親水性の液体が親油性の液体に溶けている
2. O/W型：親油性の液体が親水性の液体に溶けている

- HLB(親水親油平衡)

親水基と親油基のバランスを示す値で0~20の数値で表される。式5.2で算出でき、値が小さい程親油性が強い。

$$\text{HLB} = 7 + \Sigma(\text{親水基の個数}) - \Sigma(\text{親油基の個数}) \quad (5.2)$$

界面活性剤の選択

本研究では臭化リチウム水溶液を有機溶媒中に最大濃度まで均質に分散させる必要があり、その際 HLB 値の選択が最も考慮しなければならない点である。上記の界面活性剤の種類のうち非イオン性界面活性剤は化学的にも安定で酸やアルカリへの耐性があり、最大の特徴は用途に応じて親油基と親水基の個数を様々に組み合わせることによって最適の HLB の物質を選択出来ることが挙げられる。よって本研究では非イオン性界面活性剤の中から最適なものを選択することにする。

非イオン性界面活性剤は様々な分野で用いられており種類も膨大な数が存在するが、液体シンチレータ作成において重要な点である、無色透明であることと常温で液体であることを条件に課すと殆どの物質は除外されてしまう。残った物質のうち以下のものを入手し、その性能を評価する。全て日油株式会社製である [40]。

以下の図 5.12 に界面活性剤の種類と構造式を示す。また表 5.12 に各界面活性剤とプソイドクメンを 1 対 1 の重量比で混合した液体に水を加えたときの分離する直前の最高含水率の結果を示す。様々な HLB 値を持つ界面活性剤を用いて実験したが、最も小さい 13.3 である物質、③ ポリオキシエチレン (10) ノニルフェニルエーテルが含水率 25.8% で最も良く水を含有することが出来た。

よって本研究ではポリオキシエチレン (10) ノニルフェニルエーテルを用いることにする。

- ① ポリオキシエチレン(10)オクチルフェニルエーテル
- ② ポリオキシエチレン(40)オクチルフェニルエーテル
- ③ ポリオキシエチレン(10)ノニルフェニルエーテル
- ④ ポリオキシエチレン(8)2-エチルヘキシルエーテル

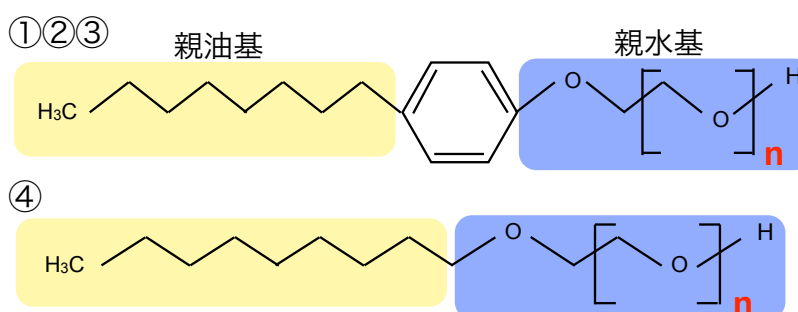


図 5.12: 界面活性剤の種類と構造式

No.	親油基	親水基 (n)	HLB	含水率 [wt%]
①	C ₈ H ₁₇	10	13.6	20.6
②	C ₈ H ₁₇	40	17.9	10.7
③	C ₉ H ₁₉	10	13.3	25.8
④	C ₈ H ₁₇	8	14.6	11.5

表 5.12: 各界面活性剤の実験結果：番号は図 5.12 の各界面活性剤の番号に対応する。

混合比の最適化

これまで本研究の要請に最も良く合致するリチウム化合物と界面活性剤を決定した。そこで界面活性剤と有機溶媒の混合比の最適化を行う。

有機溶媒は一般的な液体シンチレータに用いられているプソイドクメンを用いる。良い発光伝達物質として知られていて入手し易く、界面活性剤とも問題なく混合出来る。

有機溶媒と界面活性剤の混合比を決定する為にそれぞれ異なる割合で混合した液体に水を加え、分離したりゲル化する直前の最大含有量を調べた。尚界面活性剤は上記で選択した4種類を用いて実験を行った。結果を図 5.13 に示す。

界面活性剤の割合が低いと極端に少量の水でも分離してしまい、どの種類の界面活性剤でも最大の含水率が得られたのはプソイドクメンと界面活性剤を1対1で混合した液体であった。界面活性剤の方が多い液体は次いで高い含水率を得られたが水を加える前から粘性が高く、含水率10%を超えたあたりからは殆ど流動性の無い液体になった。またどの混合比でも最も良く水を含有させることが出来たのは③の界面活性剤であった。

以上の結果から、有機溶媒であるプソイドクメンと界面活性剤であるポリオキシエチレン(10)ノニルフェニルエーテルを同量混合した液体が本研究には最適であると考えられる。

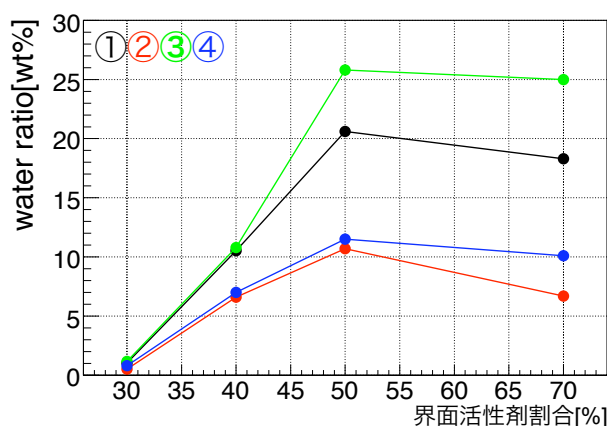


図 5.13: 界面活性剤と有機溶媒の混合比の最適化：番号は図 5.12 の各界面活性剤の番号に対応する。

リチウム含有液体シンチレータの作成

これまでの考察に基づいて最終目的である、リチウム含有液体シンチレータを作成する。作成方法は以下の通りである。

- 1. 臭化リチウム一水和物を用いて飽和水溶液を作成する
- 2. プソイドクメンに発光物質である PPO を必要量加える
- 3. 2 の溶媒とポリオキシエチレン (10) ノニルフェニルエーテルを同量ずつ混合した溶媒を作成する
- 4. 3 の溶媒に 1 の臭化リチウム水溶液を少量ずつ加え、最大量まで含有させる

界面活性剤と有機溶媒の混合物に臭化リチウム水溶液を加え良く震盪すると液中で細かい固まりになって分散し、激しく泡立つ。時間が経つにつれて泡立ちが収まると無色透明な液体になった。一度に大量の臭化リチウム水溶液を加えると泡立ちが収まるまでの時間も長くなり効率よく臭化リチウム水溶液を導入出来ないことが分かった。また臭化リチウム水溶液を加えるにつれて粘性が高くなり分離やゲル化が起こる直前の最大の量まで導入すると、粘度の高い液体シンチレータになることは避けられない。この性質が透過率や発光量にどのように影響するかは考察が必要である。

表 5.13 に上記の作成方法に従って作成したリチウム含有液体シンチレータのリチウム含有量を目標値と比較して示す。リチウム濃度は目標量に達していないが、実用化に向け大量に作成する時に有利な低コストの作成方法を独自に開発することが出来た。

	含水率 [wt%]	Li[wt%]	⁶ Li[wt%]
PC+界面活性剤+臭化リチウム水溶液	7.8	1.04	0.078
目標量	15.0	2.0	0.15

表 5.13: 自作液体シンチレータと目標値の比較

5.6 作成方法のまとめ

本研究で独自に開発したリチウム含有液体シンチレータの作成方法にしたがって作成した結果を表 5.14 に示す。

リチウム含有量の目標量 2.0wt%を達成することは今後の課題である。その解決方法として

- 脱水

界面活性剤使用法によって作成した液体シンチレータを減圧下に置くと水分が蒸発することが確かめられている。この方法により液体シンチレータの粘性を弱め、総重量を軽く出来るのでリチウム濃度を高めることが出来る。有機溶媒中の水分量を高精度で測定することが出来る水分計を用いて蒸発水分量の測定や、水分蒸発後の液体シンチレータの発光量や透過率を測定し、その効果を検討中である。

本研究で独自の方法で既製品を用いずにリチウム含有液体シンチレータを作成出来ることを確認できたことは大きなインパクトを持つ。次章では自作した液体シンチレータを用いて様々な物理的性質や長期安定性等を検証する。

溶媒	リチウムの状態	含水率 [wt%]	Li[wt%]	⁶ Li[wt%]
エチレングリコール	安息香酸リチウム	-	1.11	0.083
シンチレータカクテル	臭化リチウム水溶液	6.1	0.81	0.061
PC+界面活性剤	臭化リチウム水溶液	7.8	1.04	0.078
目標量		15.0	2.0	0.15

表 5.14: 自作液体シンチレータと目標値の比較

第6章 性能評価

第5章で独自に開発した以下の作成方法

1. 有機溶媒直接溶解法

エチレングリコール+安息香酸リチウム+PPO

2. 界面活性剤使用法

プソイドクメン+ポリオキシエチレン (10) ノニルフェニルエーテル+臭化リチウム水溶液+PPO

によって作成したリチウム含有液体シンチレータについて性能評価を行う。

6.1 透過率

リチウム含有液体シンチレータの透過率を吸光光度計を用いて測定した。

装置の概要を図 6.1 に示す。1cm と 10cm のセルに同じサンプルを入れ、それぞれの透過率を測定することでセルの影響がキャンセルされて低バックグラウンド環境でサンプルの 9cm の透過率が測定出来る。但し、透過率が 100% に近く屈折率が液体シンチレータと同程度であることが知られているシクロヘキサンを用いて測定した結果をベースラインとして設定し、サンプルの測定においてはベースラインに対しての相対的な透過率を求めることになる。

測定した透過率 T より式 6.1 によってある波長における減衰長 $L[\text{cm}]$ を計算することが出来る。減衰長とは発光の全波長領域において元の光の強度の e^{-1} となる長さである。

$$T = e^{-\frac{9\text{cm}}{L}} \quad (6.1)$$

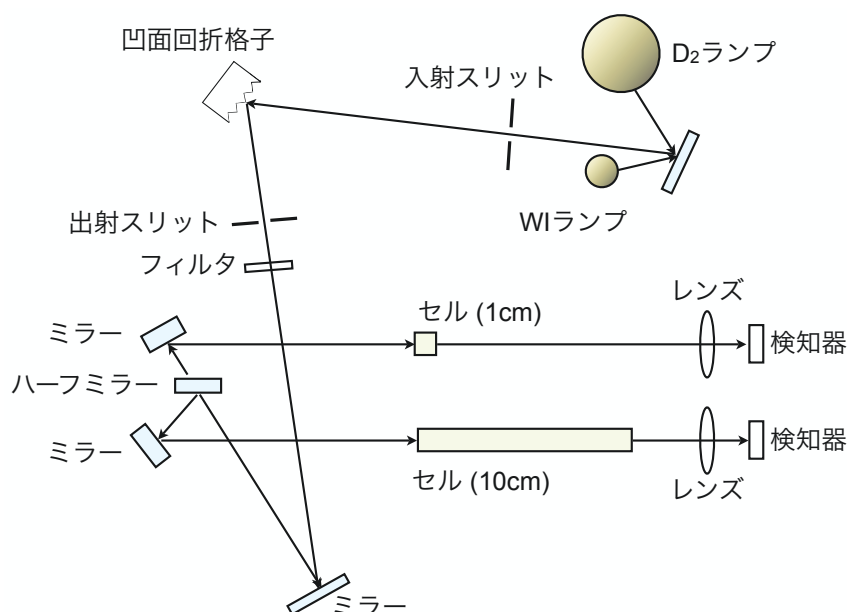


図 6.1: 吸光光度計

- 有機溶媒直接溶解法

測定結果から求めた減衰長の計算結果を表 6.1 に示す。エチレングリコールのみの時は目標値に対して十分な減衰長が得られたが、安息香酸リチウムを溶解すると極端に減衰長が短くなっている。安息香酸リチウムが透過率を悪くしていることは明らかである。

	減衰長 [cm](@400nm)
エチレングリコール	898
エチレングリコール+安息香酸リチウム	39.2
目標値	≥ 70

表 6.1: 減衰長 (有機溶媒直接溶解法)

- 界面活性剤使用法

透過率の測定結果を図 6.2 に、減衰長の計算結果を表 6.2 に示す。

界面活性剤のみの減衰長は 22.5cm と最も短い、透過率の良い有機溶媒であるプソイドクメンとの混合物では 64.6cm と約 3 倍になっている。更に水を加えたところ減衰長は 77.2cm と改善し水は透過率を悪くする原因にはならないことが分かった。また最終目的である臭化リチウム水溶液を加えたところ減衰長は 64.6cm となり、界面活性剤とプソイドクメンのみの混合物の場合と同じ値になった。これらの結果から

- 界面活性剤は透過率が悪い
- 水を加えると透過率が改善する
- 臭化リチウムは透過率を悪くしている

という考察が出来る。

作成したリチウム含有液体シンチレータの減衰長は目標値である 70cm には届かないが、64.6cm とほぼ目標値に近い結果が得られた。また透過率を悪くしている原因はリチウム化合物にあり、リチウムを液体シンチレータに含有させなければならない限り避けては通れない影響であると考えられる。

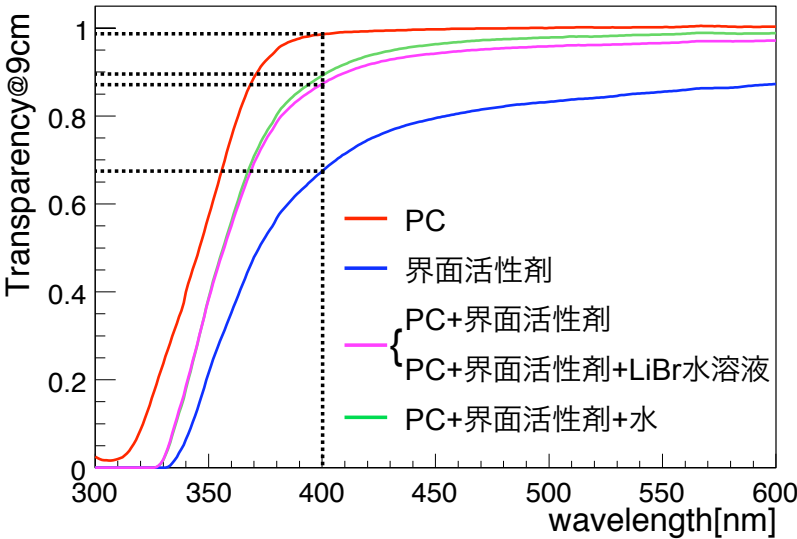


図 6.2: 界面活性剤と水溶液の透過率への影響

	減衰長 [cm](@400nm)
PC	295
界面活性剤	22.5
PC+界面活性剤	64.6
PC+界面活性剤+LiBr 水溶液	64.6
PC+界面活性剤+水	77.2
目標値	≧70

表 6.2: 減衰長 (界面活性剤使用法)

6.2 発光量

6.2.1 測定原理

γ 線と物質の相互作用

^{137}Cs 線源を用いて崩壊時に放出される 662keV の γ 線を液体シンチレータに照射し、発光量測定を行う。 γ 線や X 線の物質との相互作用は光電効果、コンプトン効果、電子陽電子対生成が挙げられ γ 線の持つエネルギーと物質の種類によって支配的な相互作用が異なる。発光量測定で用いる液体シンチレータの主な構成元素である炭素と γ 線の反応断面積を図 6.3 に示す。本実験で用いた ^{137}Cs からの γ 線 662keV の付近ではコンプトン効果が支配的である。

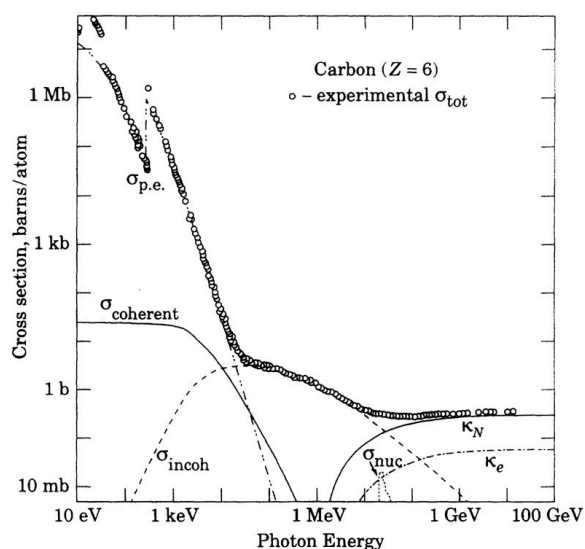


図 6.3: γ 線と炭素の反応断面積: $\sigma_{\text{p.e.}}$ は光電効果、 σ_{coherent} はレイリー散乱、 $\sigma_{\text{incoherent}}$ はコンプトン散乱、 κ_n は原子核の場合での対生成、 κ_e は電子の場合での対生成、 σ_{nuc} は原子核による光の吸収を示す。

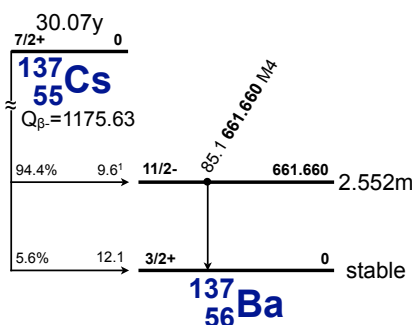


図 6.4: ^{137}Cs の崩壊図

コンプトン効果

光子が電子との弾性衝突時にエネルギーの一部を電子に与えてエネルギーを失い、散乱される現象である。(図 6.5) エネルギー及び運動量保存則を適用すると反跳電子のエネルギー E_e が以下のように求められる。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (6.2)$$

と表せる。ここで $m_0 c^2$ は電子の静止質量 (0.511MeV)、 E_γ は γ 線のエネルギーである。式 6.2 より $\theta = 180^\circ$ のとき、つまり後方散乱のときに反跳電子は最大エネルギー $E_e(\max)$ となり、この $E_e(\max)$ をコンプトンエッジと言う。

$$E_e(\max) = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_0 c^2}} \quad (6.3)$$

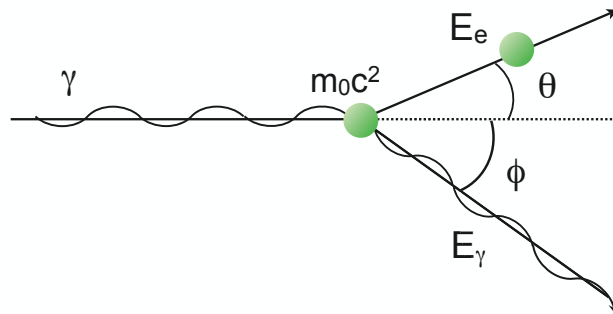


図 6.5: コンプトン効果の概念図

発光量測定方法

^{137}Cs 線源の 662keV の γ 線によって作られた後方散乱イベント、つまり 447keV の反跳電子による発光を液体シンチレータで測定し、さらに反跳後の 185keV の γ 線を NaI シンチレータで同時計測する。これによってバックグラウンドを大幅に低減し、後方散乱イベントのみを効率的に測定することが出来る。測定装置と後方散乱イベントの概念図を図 6.6 に示す。

図 6.7 は、自作リチウム含有液体シンチレータの発光量と比較する為の基準となる液体シンチレータの測定結果である。基準液体シンチレータとは、KamLAND で用いられているものと同じ構成 (プソイドクメン 20%、ノルマルパラフィン 80%、PPO1.36g/l) の液体シンチレータを自作したものである (図中、文中で KamLAND 液体シンチレータと標記する)。

左図の NaI 側スペクトルにおいて選択した 185keV の黄色部分は、液体シンチレータ側スペクトルにおける黄色部分、即ち後方散乱を起こした 447keV の β 線に対応する。このスペクトルを Gaussian でフィッティングして得られた中心値の ADC チャンネル数が発光量に比例することを用い、それぞれの種類の液体シンチレータの発光量を比較する。

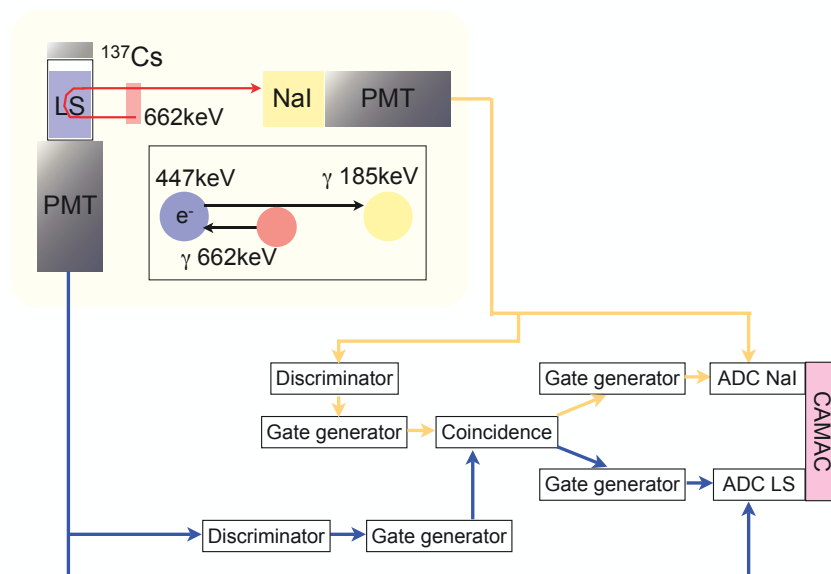


図 6.6: 発光量測定装置と後方散乱イベントの概念図

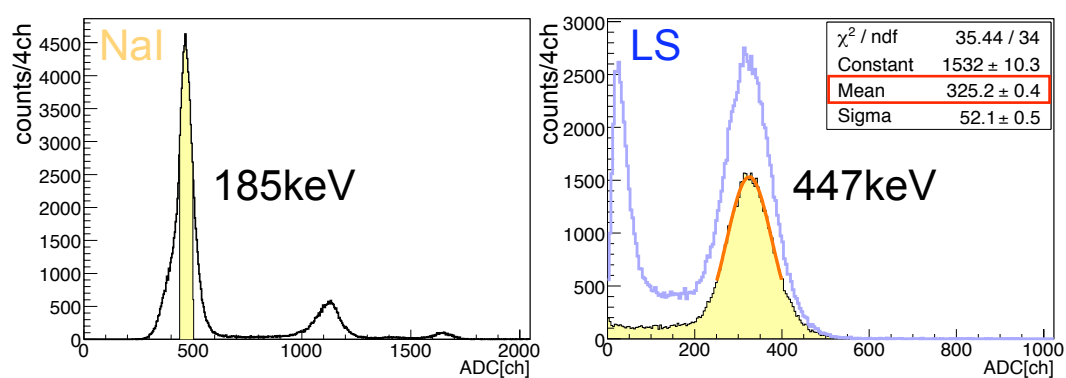


図 6.7: 後方散乱スペクトル：左図の NaI 側スペクトルにおいて選択した黄色部分は右図の液体シンチレータ側スペクトルで黄色部分に対応する。これが後方散乱を起こしたイベントである。

6.2.2 測定結果

- 有機溶媒直接溶解法

同時計測を行う前に液体シンチレータ側のスペクトルを見る事でコンプトンエッジを読み取ることが出来るか確認した結果が図 6.8 である。

赤で示した KamLAND 液体シンチレータは 450 チャンネル付近にコンプトンエッジを確認出来るが、黒で示したリチウム含有液体シンチレータは全く見られない。発光のエネルギーを効率良く伝達するには π 電子を持つベンゼン環のある有機溶媒が有効であることが知られている。しかしリチウム化合物を溶解することが出来る事を最優先に選択したエチレングリコールにはベンゼン環が無く、液体シンチレータ中で発光が起きててもそれを伝達することが出来ないと考えられる。

そこでベンゼン環を持つパラヒドロキシ安息香酸メチル(メチルパラベン)を加え発光量に変化が見られるか測定を行った。パラヒドロキシ安息香酸メチルは化粧品等によく用いられる安定剤であり、白色粉末でアルコールやエーテルに良く溶ける。エチレングリコール 100g に最大量溶かすと 58.3g 溶解して無色透明な液体になった。この液体に安息香酸リチウムと PPO を溶解させて作成したリチウム含有液体シンチレータの発光量を測定したところ、パラヒドロキシ安息香酸メチル導入前と比較して微少ながらコンプトンエッジを確認できたが目標の性能には程遠く、良い結果が得られなかった。

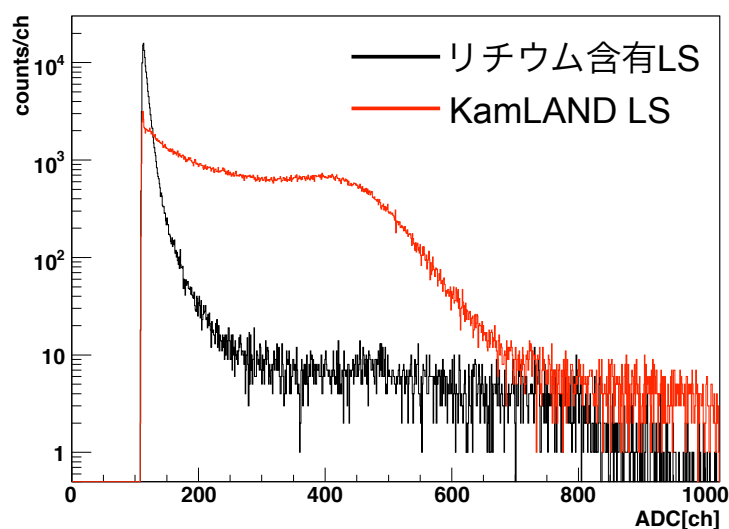


図 6.8: 有機溶媒直接溶解法で作成したリチウム含有液体シンチレータのコンプトンエッジスペクトル

- 界面活性剤使用法

表 6.3 に KamLAND 液体シンチレータと比較した自作液体シンチレータの発光量測定結果を示す。プソイドクメン (図中では PC) と界面活性剤のみの場合、標準液体シンチレータに比べて約 10% の発光量の減少にとどまっているのに対し、水や臭化リチウム水溶液を加えると発光量減少率は格段にあがっている。含水率が等しい場合、臭化リチウムを含有すると発光量は 30% 程度減少している。これらの結果から、水も臭化リチウムも発光量を減少させる原因物質であるが臭化リチウムの方がより強いクエンチャーであることが分かった。

	含水率 [wt%]	Li[wt%]	発光量の割合 [%]
KamLAND LS	-	-	100
PC+界面活性剤	-	-	91.5±0.1
PC+界面活性剤+水	7.8	-	71.2±0.2
PC+界面活性剤+LiBr 水溶液	7.8	1.04	47.1±0.1
目標値	15	2.0	≥100

表 6.3: 発光量 (界面活性剤使用法) : 全てのサンプルは発光物質として PPO を含有している。

そこで含水率の異なるサンプルを作成し、水の場合と臭化リチウム水溶液の場合での発光量の変化を調べた (図 6.9)。どの含水率のサンプルでも臭化リチウム水溶液を含有したサンプルの方が水の場合よりも常に 20% 程度小さい発光量であった。それぞれの測定値から臭化リチウムのみの影響 r_{LiBr} を式 6.4 を用いて計算すると図中の三角で示した点になる。

$$r_{\text{LiBr}} = r_0 - (r_{1i} - r_{2i}) \quad (i = 1, 2, 3) \quad (6.4)$$

r_0 は PC と界面活性剤のみの場合、 r_{1i} は水のみを加えた場合 (図中の黒丸)、 r_{2i} は臭化リチウム水溶液を加えた場合 (図中の赤丸) の発光量を KamLAND 液体シンチレータと比較した時の比を示す。水の場合には加える量が増すと直線的に発光量が減少しているが、臭化リチウムのみの影響は少量加えたところで一気に減少し、量を増していても 70% 程度で安定している。出来るだけ高濃度のリチウム含有液体シンチレータを作成する為には限界まで臭化リチウム水溶液を加えなければならず、水と臭化リチウムによる発光量の減少は避けられない問題である。

発光量測定実験より有機溶媒直接溶解法で作成した液体シンチレータはリチウムを含有出来たが発光を確認出来ない致命的欠点があることが分かり、更に詳しい性能評価をする意義は無いと判断出来る。長期安定性、 α クエンチ効果の測定は界面活性剤使用法で作成した液体シンチレータのみについて行うことにする。

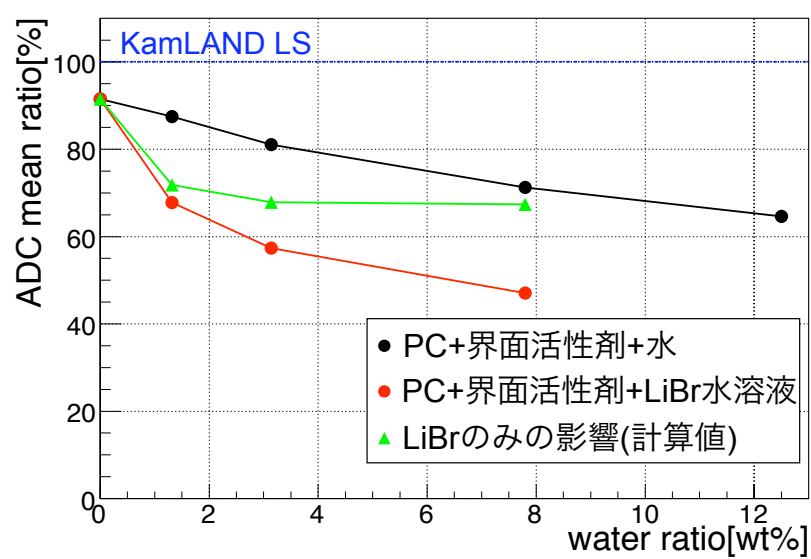


図 6.9: 含水率と発光量の関係 : KamLAND 液体シンチレータの発光量を 100%とした。水含有と臭化リチウム水溶液含有の液体シンチレータの含水率による発光量の変化を示す。臭化リチウムのみの影響は測定値から予測される計算値である。

6.3 長期安定性

実験装置に実装する場合に重要な課題である長期安定性について考察する。

界面活性剤使用法で作成した液体シンチレータを室温で4ヶ月程放置したものが薄い黄色に変色していた。実験装置に実装する場合少なくとも1年は安定した性能を保持していなければならないと考えられるので、この変色、つまり液体シンチレータの劣化の原因と劣化割合を検証しなければならない。

一般に気温が10°C上昇すると化学反応の速度が2倍になることが知られており、自作した液体シンチレータを45°Cの恒温槽に入れ約8倍の加速実験を行った。劣化の原因を調べる為、以下の7つのサンプルを100ml程度作成し150mlバイアル入れて恒温槽に入れ変化を調べた。

1. プソイドクメンのみ
2. 界面活性剤のみ
3. プソイドクメンと界面活性剤の同量ずつの混合液
4. プソイドクメンにPPOを5.0g/l溶かし込み、更に同量の界面活性剤と混合した溶液
5. 4に水を含有させた溶液
6. 4に臭化リチウム水溶液を含有させた溶液
7. KamLANDの液体シンチレータと同じ構成の溶液(プソイドクメン20%、ノルマルパラフィン80%、PPO1.35g/l)

結果は6の臭化リチウムを含有させたものだけが15日で薄い黄色に変色し、15日という期間も室温では4ヶ月で変色した結果とよく一致している。また界面活性剤を用いて有機溶媒と水を混合しているサンプルでも分離や沈殿といった変化は見られず安定して均質に有機溶媒中に分散されていることを確認できた。

発光物質であるPPOを溶かし込んでいるサンプルについて発光量の測定を行った結果を図6.10に示す。サンプルに溶け込んでいる空気によっても発光量は減少していると考えられるが、臭化リチウム水溶液を溶かし込んだサンプルは15日で40%程度も発光量が減少している。他のサンプルの減少率はどれも数%であるので、やはり臭化リチウムは劣化させて発光量が減少する原因となっていると結論付けられる。

臭化リチウム水溶液は腐食性があり、界面活性剤や有機溶媒を酸化することで変色している可能性が考えられる。PHT(2-6-Di-tert-butyl-4-methylphenol)は接着剤やゴム等の樹脂の酸化防止剤として用いられている物質で、劣化の初期段階で反応を停止する働きがある。この物質を用い、液体シンチレータの劣化を防止し性能を維持出来るか試験を行う予定である。また臭化リチウム水溶液の弱アルカリ性が劣化に影響している可能性もあり、中和剤等を用いて液性を調整し長期安定性を確認していくことが必要である。

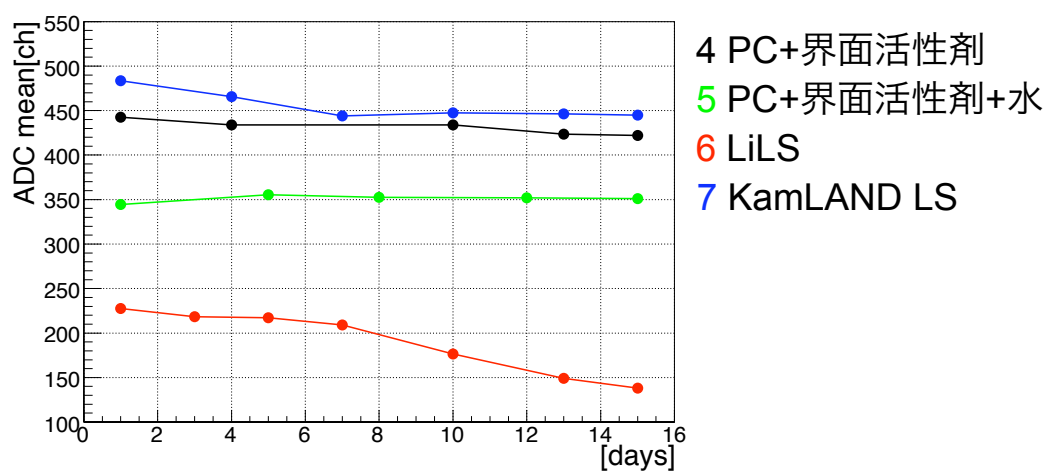


図 6.10: 発光量の時間変化

	5 日後	15 日後
KamLANDLS	95	92
界面活性剤+PC	98	96
界面活性剤+PC+水	100	100
LiLS	95	60

表 6.4: 長期安定性：作成直後を 100 とする。LS は液体シンチレータの略。

6.4 α クエンチ

リチウム含有液体シンチレータにおいて後発信号となる α 線のクエンチ効果を、ラドン線源を用いた娘核 ^{214}Po の 7.687MeV の α 線を測定して見積もる。測定の前段階として液体シンチレータ中に高濃度ラドンガスを溶かし込む必要がある。 ^{222}Rn 線源として半減期 1600 年の ^{226}Ra を使用し、図 6.11 に示す系を用いてサンプルにラドンガスを送り込む。

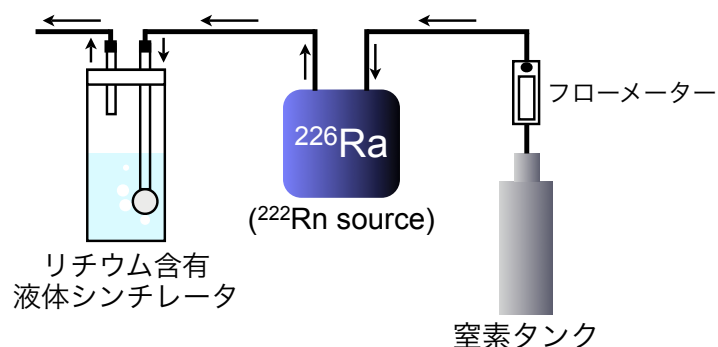


図 6.11: ^{222}Rn のサンプルへの溶解

このサンプルを用いて α 線のクエンチ効果を測定する。図 6.12 に示すように、サンプル中に溶かし込んだ ^{222}Rn の娘核 ^{214}Po の崩壊時に放出される 7.687MeV の α 線を線源として用いる。 ^{214}Po は 164.3 μsec という短い半減期を持つので ^{214}Bi からの β 線との間で遅延同時計測が可能であり、大幅にバックグラウンドを低減出来る。

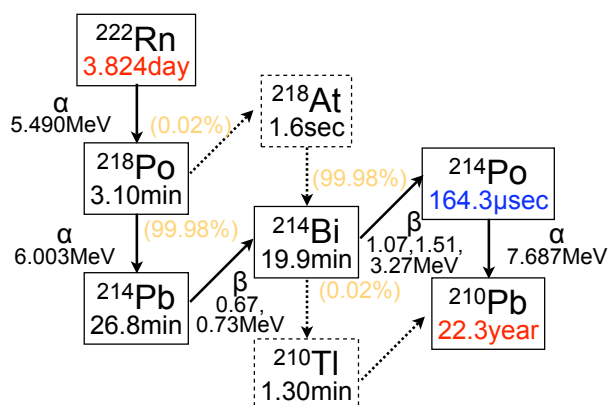
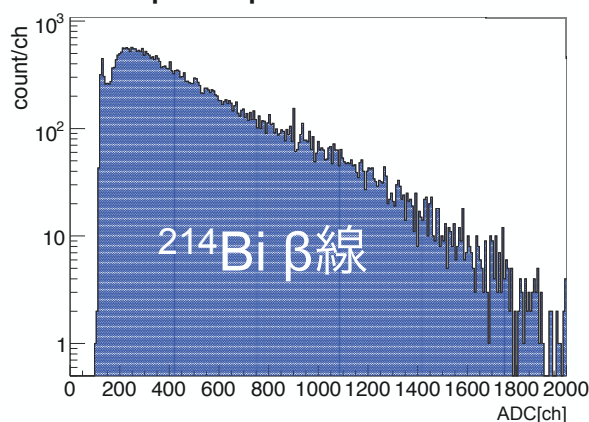


図 6.12: ^{222}Rn から ^{210}Pb までの崩壊図

先発信号の後 1msec 幅のゲートを設定しその間に入ってくる信号を後発信号とするように回路を組み、遮光、且つバックグラウンドの低減の為 7cm 程度の厚さの鉛ブロックで 150ml バイアルに入れた測定サンプルと 2inch の PMT を取り囲んで測定を行った。 ^{214}Po の半減期は $164.3\mu\text{sec}$ なので 1msec 幅の設定で十分であると考えられる。

同時遅延計測により得られた信号の先発信号と後発信号を図 6.13、またそれらの時間相関を図 6.14 に示す。下図の後発信号の 450ch 付近にあるピークが ^{214}Po の α 線 (7.687MeV) であるので色を塗りつぶした部分を選択し、上図のようにそれに対応する先発信号の ^{214}Bi の β 線の分布が得られる。イベントは ^{214}Po の α 線が支配的であると予測される。選択した先発信号と後発信号の時間差の分布をフィッティングして壊変定数を求め半減期を計算すると、 $168.5 \pm 2.6\mu\text{sec}$ となる (図 6.14)。 ^{214}Po の半減期 $164.3\mu\text{sec}$ をほぼ再現出来、イベントの抽出が良い精度で行われていることが確認出来た。

対応する prompt event



delayed event

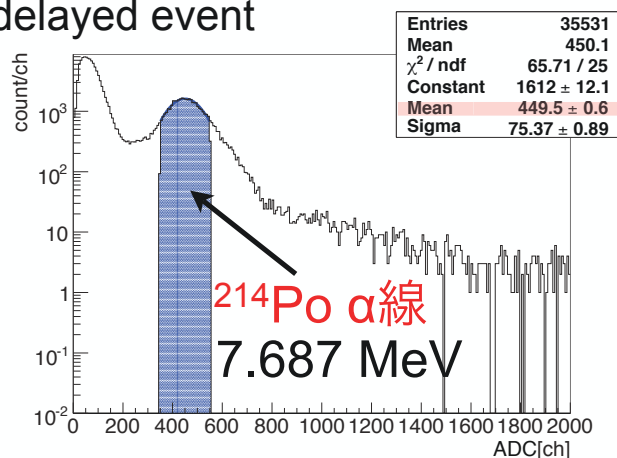


図 6.13: α クエンチ測定結果：左図は先発信号、右図は後発信号。色を塗りつぶした後発信号での ^{214}Po の α 線 (7.687MeV) イベントを選択し、それに対応する先発信号を選ぶ。

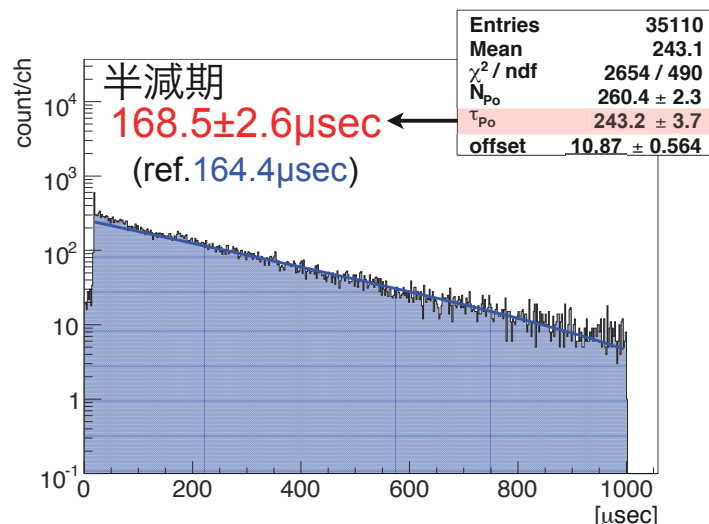


図 6.14: 先発信号と後発信号の時間差

これらの結果を用い、リチウム含有液体シンチレータにおける α 線のクエンチ効果を見積もる。まず液体シンチレータ中でクエンチ効果の低い線源を用い、ADC チャンネル数とエネルギーの関係を求める。線源として ^{137}Cs 線源の 662keV の γ 線を用い、測定したところコンプトンエッジのフィッティング結果が $299.0 \pm 0.9 \text{ch}$ であった。図 6.13 より ^{214}Po の 7.687MeV α 線のピークは $449.5 \pm 0.6 \text{ch}$ であったので、 ^{214}Po の α 線 α 線のクエンチングファクターは 9 と計算される。KamLAND で用いられている構成の液体シンチレータ (プソイドクメン 20%、ノルマルパラフィン 80%、PPO1.36g/l) では α 線のクエンチングファクターは 14 であることが分かっており、この値に比べてリチウム含有液体シンチレータの α 線に対するクエンチ効果は低いことが分かる。これはプソイドクメン等の芳香族溶媒がクエンチ効果が低いことが知られており、リチウム含有液体シンチレータでは半量がこの芳香族溶媒である為であると考えられる。

^6Li が中性子を吸収して放出する 1.9MeV の α 線と 2.9MeV の ^3H による信号が後発信号となる。クエンチングファクターはエネルギー依存性があり、KamLAND の液体シンチレータの結果と比較すると ^6Li 由来の α 線のクエンチングファクターは十数分の一と見積もられる。 ^3H は α 線よりのクエンチ効果が低いと予想されるので、両粒子による後発信号は更に高いエネルギーが期待される。それを確認する為 ^{252}Cf や Am/Be 等の線源を用いた測定を計画中である。

第7章 結論

7.1 まとめ

反ニュートリノの到来方向の ${}^6\text{Li}$ を含有した液体シンチレータによる検出原理を示し、その可能性を見積もった。更に本研究によりリチウム含有液体シンチレータの低成本作成方法を独自に開発し、その性能評価を行ったことは大きな成果である。

自作した液体シンチレータの作成結果をまとめる。親水性のリチウム化合物を有機溶媒に導入する為、臭化リチウム水溶液を界面活性剤を用いて有機溶媒中に均一に分散させるという方法で開発を行った。界面活性剤の種類の選択と有機溶媒と界面活性剤の混合比の最適化を行い、液体シンチレータを作成した結果を表 7.1 に示す。またリチウム含有量と減衰長、発光量の測定結果を目標値と比較して表 7.2 示す。

	物質名	混合比
有機溶媒	プソイドクメン	40 wt%
界面活性剤	ポリオキシエチレン (10) ノニルフェニルエーテル	40 wt%
リチウム化合物	臭化リチウム水溶液	20 wt%
発光物質	PPO	5.0 g/l

表 7.1: 自作液体シンチレータの物質と混合比

	Li[wt%]	${}^6\text{Li}$ [wt%]	減衰長 [cm]	発光量 [%]
作成結果	1.04	0.078	64.6	47.1±0.1
目標	2.0	0.15	≥70	≥100

表 7.2: 自作液体シンチレータと目標値の比較：減衰長は波長 400nm における値、発光量は KamLAND の液体シンチレータとの比較値。

自作した液体シンチレータの更に詳しい性能評価を行った。

- 長期安定性

15°C の実験環境を想定した場合の約 8 倍の速度の 45°C の加速実験で 15 日で薄い黄色に変色し、発光量も作成直後の 60% に減少した。臭化リチウム水溶液を含有しない液体シンチレータは変色せず発光量の減少率も数%であったので、臭化リチウムが劣化の原因であると考えられる。

- α 線のクエンチ効果

リチウム含有液体シンチレータにおける後発信号のエネルギーを見積もる為にラドン線源を用いた娘核 ^{214}Po の α 線を用いたクエンチ効果の測定を行った。KamLAND で用いられている液体シンチレータにおいては 1/15 にクエンチされるが、本研究の液体シンチレータは 1/9 であることが分かった。これはクエンチ効果の低い有機溶媒を半量含んでいることが理由として考えられる。 ^6Li の中性子吸収時に放出される 1.9MeV の α 線はエネルギーによるクエンチ効果の違いを考慮すると十数分の一となる。また同時に放出され、共に後発信号となる 2.9MeV の ^3H は α 線よりのクエンチ効果が低いと予測出来、後発信号は更に高いエネルギーを期待出来る。

また最も近い将来の計画である小型検出器を用いた原子炉非破壊診断への応用に向け、原子炉反ニュートリノのエネルギー領域に対しての方向検出の可能性を見積もった。現存する液体シンチレータでは中性子の拡散が十数 cm、先発・後発信号の間隔が $200\mu\text{sec}$ あるが、リチウム含有液体シンチレータでは拡散を 4.5cm、時間間隔 $18.5\mu\text{sec}$ に短縮出来る。原子炉反ニュートリノのエネルギー領域に対しては角度分解能 (1σ) 90.1° である。

7.2 今後の展望

^6Li の目標濃度 0.15wt% を達成し目標性能を達成することは出来なかったが、現在効果を検討中の解決策を挙げる。

- 液性調整

界面活性剤はアルカリ性に対してその性能が低下してしまうことが知られている。本研究で用いた臭化リチウム水溶液は弱アルカリ性であるので、酸を用いてその液性を中性にして導入することで含有量を増やすことが出来る可能性がある。但し、酸はプソイドクメンを酸化し劣化を早める原因となるので加える酸の選択と量は慎重な最適化が必要である。

- 脱水

作成した液体シンチレータを減圧環境に置くと脱水することが出来ることを確認している。この方法を確立出来れば界面活性剤の量減らせリチウム濃度も高めることが出来る上に、粘性が高まることも抑えられるので発光量、減衰長の改善も望める。有機溶媒中の微量な水分を測定することが出来る水分計を用いて脱水量の測定と、作成した液体シンチレータの性能変化の見積もりを行っている。

- 酸化防止剤

長期安定性が保てなかった理由として液体シンチレータ中で酸化が起り変色して発光量の減少を招いた可能性がある。劣化の初期段階でその反応を止める働きのある酸化防止剤を用いることを検討中である。

- 有機溶媒に直接溶解する方法の検討

イオン性液体という物質があり常温でも安定して存在する塩であるので、イオンの形状でリチウムを溶解出来る。これを有機溶媒で希釈することで液体シンチレータを作成することが出来ると考えられる。しかし研究途上の高価な物質であるので、使用可能性を確認している。

上記の様な可能性を模索していた時に、入手不可能と言われていた濃縮 ^6Li が安価で手に入る可能性が出てきた。炭酸リチウムの形状で 2kg、つまり ^6Li を 375g 入手出来ることになる。またクラウンエーテルという環の大きさによって中心に取り込む金属陽イオンを選択出来る物質を用いて、低コスト濃縮技術が確立されつつある。(以前この物質を用いてリチウムを有機溶媒に取り込む事を検討したが、黄色の液体であるので発光量が期待出来ず液体シンチレータには向かないと判断した。)

本研究で開発した技術を用いれば ^6Li 濃度、発光量、減衰長、長期安定性等、全ての性能を容易に達成出来る。自然存在比 7.59% の ^6Li が 50% になるまで濃縮したものであれば、現在の 40% の臭化リチウム水溶液の量で目標濃度の達成が可能である。更に低含水率で良いので界面活性剤の量を半量から 20% 程度に減らせ、臭化リチウムが少量であるので発光量は KamLAND の液体シンチレータ同程度以上を期待出来、長期安定性も確保出来る。

以上のように本研究で培ったリチウム含有液体シンチレータの作成技術と、濃縮技術の確立をもってすれば方向検出可能な液体シンチレータの完成は近い将来に望める。発光位置の直接測定を目的としたイメージング検出器の開発も進められており、原子炉反ニュートリノの検出に向けたプロトタイプ検出器の作成に向け更に研究を進めていきたい。

小型検出器での原子炉ニュートリノの方向検出は大規模化するニュートリノ実験の流れに一石をと投げ、更に社会貢献への発展が望める、大変インパクトの強い研究である。

付 録 A プロトタイプ検出器の作成に向けたシミュレーション

リチウム含有液体シンチレータを実装し反ニュートリノの到来方向が測定可能な検出器は幅広い応用可能性を持つ。本章では最も近い将来の計画である小型検出器を用いた原子炉非破壊診断への応用に向け、イメージング検出器の要請を受けたサイズでの方向検出の可能性を見積もる。

A.1 検出器の設計

A.1.1 イメージング検出器の要請

3.2節で述べたようにリチウム含有液体シンチレータを用いた到来方向検出には1cm以上の位置分解能要請される。PMT タイミングを用いた位置分解能が10cm程度であるので要請は満たせず、光学レンズと位置検出素子を組み合わせた発光位置の直接測定が可能なイメージング検出器の開発が進められている。

光学系の被写界深度と集光率は相反する関係にある為、ターゲットの規模を大きくした場合検出器の総数が著しく増加する。この要請を受け今回の設計はターゲットとして一辺30cmの立方体(容積27l)のリチウム含有液体シンチレータを6方向から観測することにより発光位置の三次元測定を行う事とする。リチウム含有液体シンチレータは界面活性剤使用法で作成し、目標量である ^6Li 0.15wt%を含有しているものとする(表 A.1)。図 A.1 に検出器の概要を示す。

プソイドクメン	40 wt%
界面活性剤	40 wt%
臭化リチウム水溶液	20 wt%
PPO	5.0 g/l
^6Li	0.15 wt%

表 A.1: リチウム含有液体シンチレータの構成

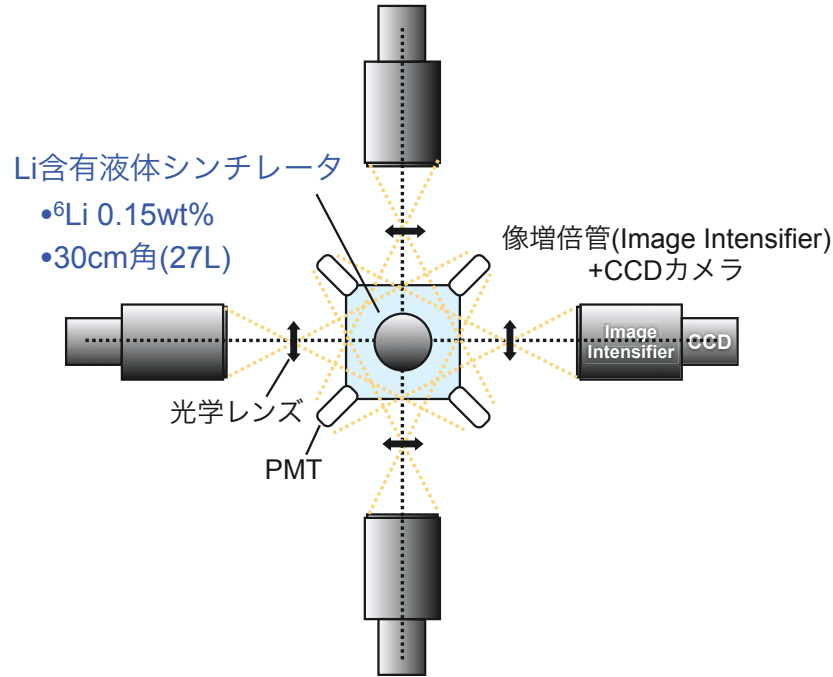


図 A.1: テストベンチ検出器の概要

A.1.2 イベント数の見積もり

KamLANDでの測定結果を元に、プロトタイプ検出器での原子炉反ニュートリノ事象数を見積もる。

プロトタイプ検出器を 3.3GW の熱出力の原子炉から距離 100m の位置に設置したと仮定する。原子炉の熱出力は現在設置場所として計画中である、新潟県柏崎刈羽原子力発電所の原子炉 1 基当たりの熱量に相当する。対する KamLAND 検出器の周辺には 130~240km の範囲に多数の原子力発電所が点在しており、これらの原子炉からの寄与は距離 180km にある 80GW の原子炉一基分に相当する。これらを踏まえ、表 A.2 に原子炉反ニュートリノ事象数の見積もりを示す。

	KamLAND	プロトタイプ検出器
距離 L	180 km	100 m
熱量 W	80 GW	3.3 GW
有効体積 V	696.89 m ³	27×10 ⁻³ m ³
検出効率 κ	89.9 %	
検出事象 N	1.26 ev/day (no oscillation)	

表 A.2: KamLAND 検出器とプロトタイプ検出器の比較

KamLANDで有効半径 5.5m、つまり有効体積 697m³ として観測を行ったとき、ニュートリノ振動による事象数の減少を考慮しないときの原子炉反ニュートリノの観測事象数の期待値 N_{KL} は 1.26ev/day である。この値と原子炉からの距離、有効体積、熱

量、検出効率の比較から見積もられる、プロトタイプ検出器における原子炉反ニュートリノ事象数 N_{proto} は、

$$\begin{aligned} N_{\text{proto}} &= N_{\text{KL}} \times \frac{W_{\text{prot}}/L_{\text{proto}}^2}{W_{\text{KL}}/L_{\text{KL}}^2} \times \frac{V_{\text{proto}}}{V_{\text{KL}}} \times \frac{1}{\kappa_{\text{KL}}} \\ &= 7.238 \quad (\text{ev/day}) \\ &= 217.1 \quad (\text{ev/month}) \end{aligned} \tag{A.1}$$

となる。一月当たり 200 程度の反ニュートリノ事象が期待出来、到来方向の検証という目的に対して十分な事象数であると考えられる。

A.2 シミュレーション

4.1 節で作成した、原子炉反ニュートリノイベントリストを用いて Geant4 によるモンテカルロシミュレーションを行った。

A.2.1 イベント発生点と発生方向の設定

図 A.2 に発生点の設定を示す。原子炉が一基の場合を想定しているので、反ニュートリノは一定方向のみから検出器に向かって到来してくる考える。この方向を y 方向として中性子の発生方向を y 軸と成す角 θ_n の方向に決め、中性子発生点 P_0 は 30cm 角の検出器の中でランダムに選ぶ。

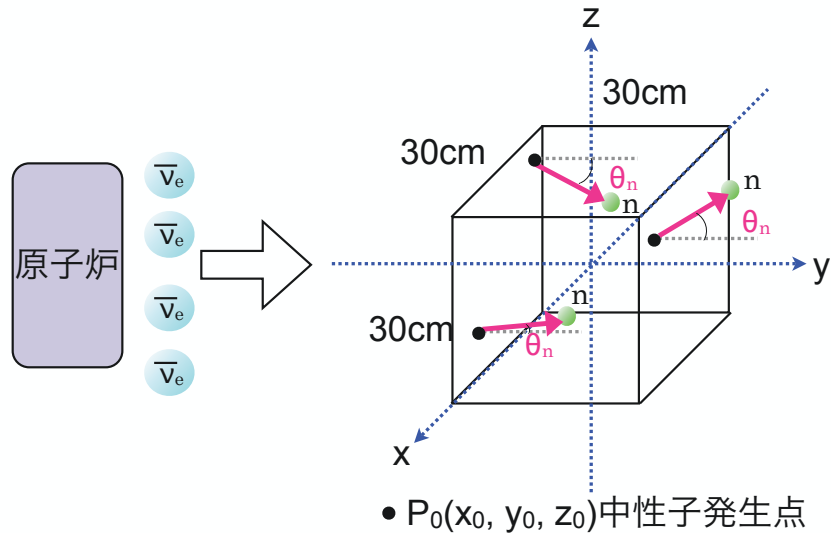


図 A.2: イベント発生位置、発生方向の設定

A.2.2 結果と考察

検出器内で発生した中性子は ${}^6\text{Li}$ に捕獲されて α 線を放出するもの、陽子に捕獲されて γ 線を放出するもの、検出されずに検出器外に出るもののいずれかである。表 A.3 にそれぞれの割合を示す。また A.3 に角度分解能 r 、拡散距離 R 、先発信号と後発信号の時間間隔 ΔT の計算結果を示す。

計算結果から中性子は放出されてから平均 4.4cm 液体シンチレータ中を移動するので検出器の外側数 cm 程度で放出された中性子は検出器外に出てしまう。よって ${}^6\text{Li}$ 捕獲イベントが 62%程度にとどまっているのは避けられない事実であると考えられる。

	全イベントに対する割合
${}^6\text{Li}$ 捕獲	$62.0 \pm 0.1\%$
陽子捕獲	$7.4 \pm 0.1\%$
検出器外	$30.6 \pm 0.1\%$

表 A.3: 捕獲割合

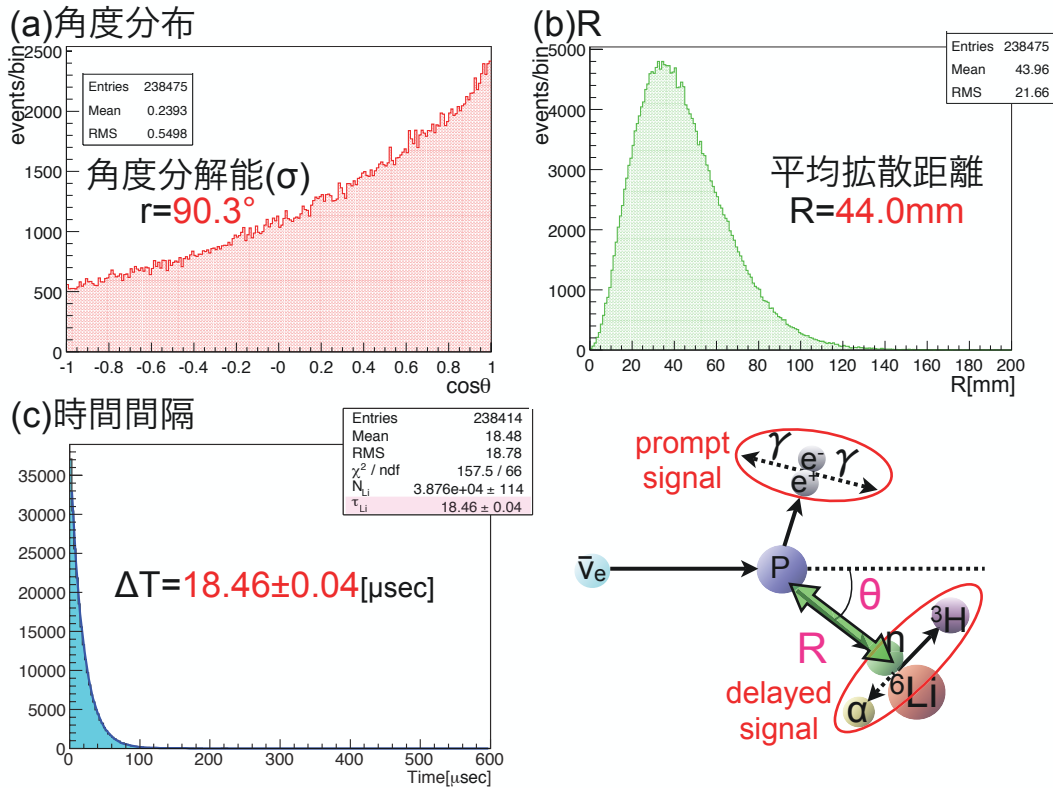


図 A.3: シミュレーション結果：右下の図に示す様に反ニュートリノの到来方向に対する中性子吸収点の角度分布を θ 、中性子が放出されてから ${}^6\text{Li}$ に捕獲されるまでに移動する距離を R 、先発信号と後発信号の時間間隔を ΔT とする

付録B ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{235}U 崩壊系列

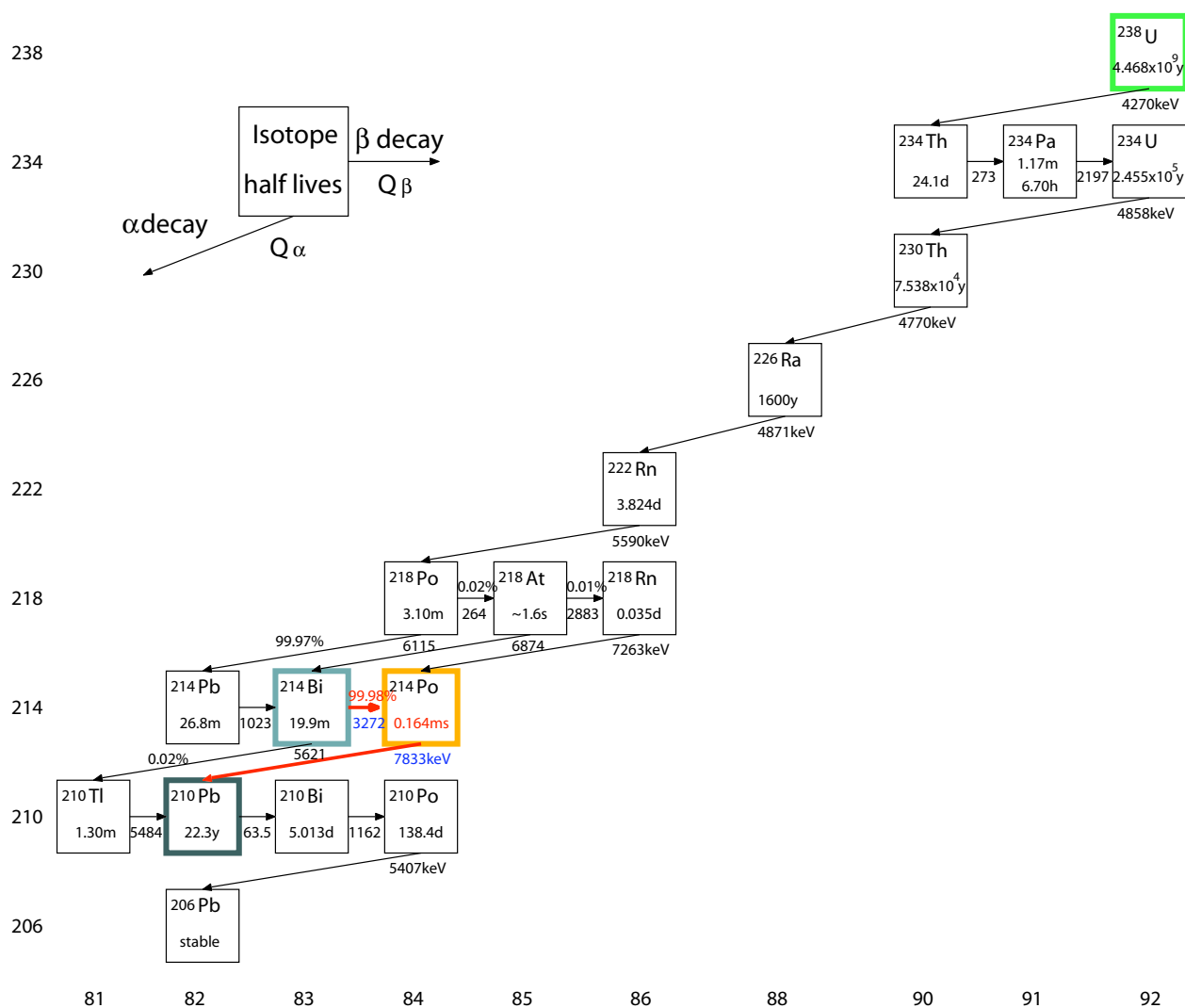


図 B.1: ウラン系列の崩壊系列

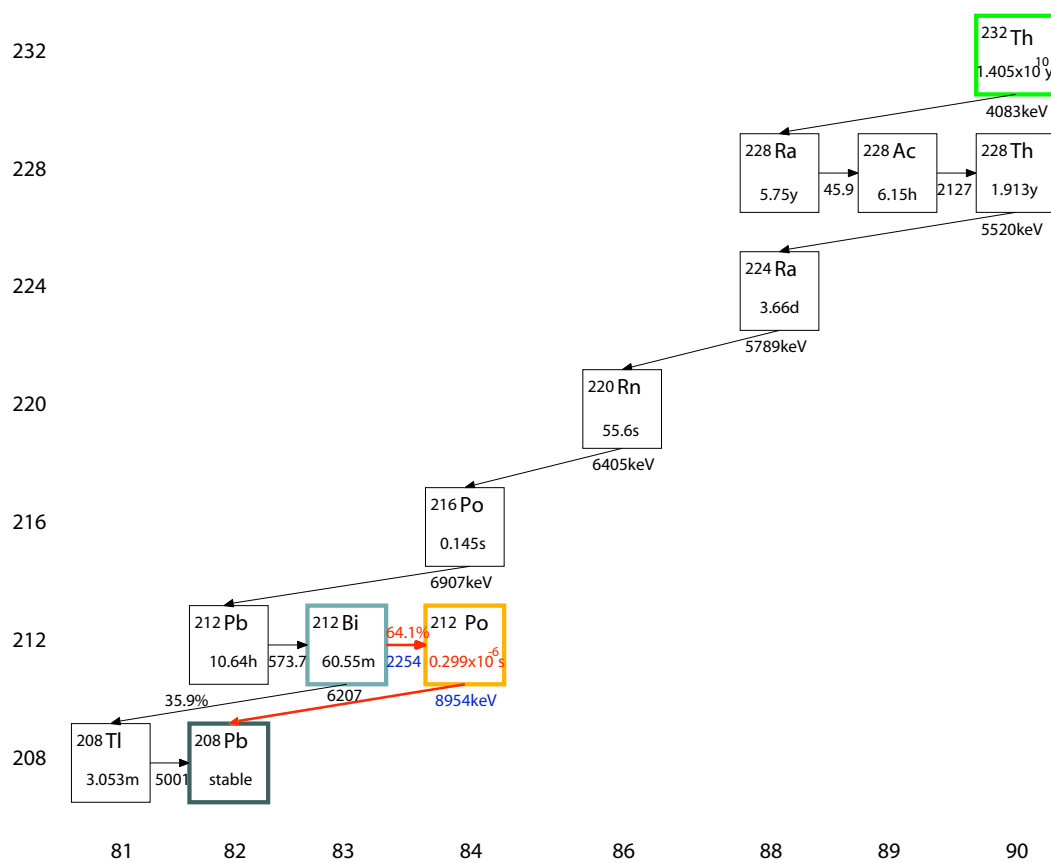


図 B.2: トリウム系列の崩壊系列

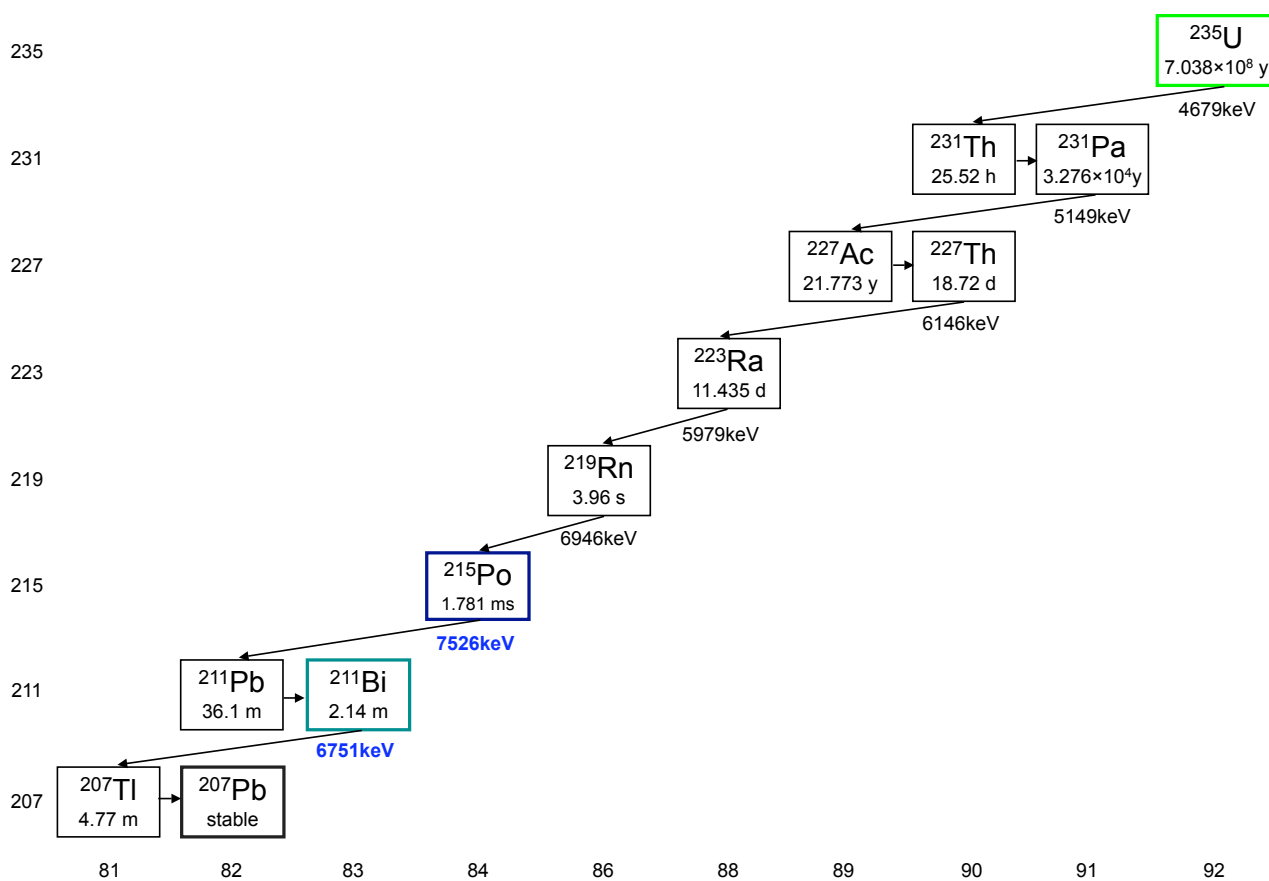


図 B.3: アクチニウム系列の崩壊系列

参考文献

- [1] B.T.Cleveland et al., Ap. J. 496 (1998) 505
- [2] John N. Bahcall : Neutrino Astrophysics, Cambridge University Press, 1988
- [3] C. Aalseth et al., APS Neutrino Study (2004) 47
- [4] H.V.Klapdor-Kleingrothaus, et al., Phys. Lett. B 586 (2004) 198
- [5] H.N.Pollack et al., Rev. Geophys. 31 (1993) 267-280
- [6] A.H.Hofmeister et al., Tectonophysics 395 (2005) 159-177
- [7] T.Araki et al. (KamLAND Collaboration), Phys. Rev. Lett. 94 081801 (2005)
- [8] Learned, John G., Dye, Stephen T., Pakvasa, Sandip, arXiv:0810.4975 (2008)
- [9] R.J. de Meijer et al., Earth, Moon and Planets, Vol 99, 193-206 (2006)
- [10] Hirata.K, et al., Phys. Rev. Lett. 58 (1987) 1490-1493.
- [11] P.Antonioli, et al., arXiv:hep-ph/0406214v2 (2004)
- [12] S.Ando and K.Sato, Prog. Theor. Phys. 107 (2002)
- [13] K.Schreckenbach et al., Phys. Lett. B 160 (1985) 325
- [14] A.A.Hahn et al., Phys. Lett. B 218(1989) 365
- [15] P.Vogel et al., Phys. Rev. C 24 (1981) 1543
- [16] B.Achkar et al., Phys. Lett. B 374 (1996) 243
- [17] Y.Declais et al., Phys. Lett. B 338 (1994) 383
- [18] M.Apollonio et al., Phys. Lett. B 466 (1999) 415
- [19] M.Maltoni, T.Schwetz, M.A.Tortola and J.W.F.Valle, arXiv:hep-ph/0405172
- [20] Charles E. Lane, arXiv:hep-ph/0810.2948 (2008) ICHEP08
- [21] K.Eguchi et al., Phys. Rev. Lett. 90 021802 (2003)
- [22] T.Araki et al., Phys. Rev. Lett. 94 081801 (2005)
- [23] S.Abe et al., arXiv:hep-ex, 0801.4589 (2008)

- [24] N.S.Bowden, et. al., Nucl. Instr. and Meth. A 572 (2007) 985
- [25] A.Bernstein, et. al., J. Appl. Phys. 103 (2008) 074905
- [26] M.Apollonio et al., Phys. Rev. D61 (2000) 012001
- [27] 石河寛昭, 液体シンチレーション測定法 (南山堂)
- [28] S.Fukuda et al., Phys. Lett. B 539 (2002) 179
- [29] S.N.Ahmed et al., Phys. Rev. Lett. 92 (2004) 181301
- [30] Super-Kamiokande home page <http://www-sk.icrr.u-tokyo.ac.jp/sk/index.html>
- [31] Neutron News, Vol1.3, 1992, pp.29-37.
- [32] S.Ait-Boubker et al., Nucl. Instr. and Meth. A 277 (1989) 461.
- [33] M.Abbes et al., Nucl. Instr. and Meth. A 374 (1996) 164.
- [34] B.Achkar et al., Nuclear Physics B 434 (1995) 503-532.
- [35] 坂口孝司, 東和大学工学部 化学と生物 35 巻 11 号 p.752-754 (1997).
- [36] 浅原照三他編, 溶剤ハンドブック (講談社サイエンティフィク)
- [37] 日本化学学会編, 化学便覧 基礎編 (丸善)
- [38] 液体シンチレーション計測用試薬カタログ (同仁化学社)
- [39] 北原文雄, 界面活性剤の話 (東京化学同人)
- [40] 油化製品総合カタログ (日油株式会社)
- [41] S. Agostinelli, et al., NIM A 506(2003), 250-303
- [42] P.Vogel and J.F.Beacom, Phys. Lett. D 60, 053003 (1999)
- [43] E.Amaldi, in Encyclopedia of Physics, edited S.Fluegge, Vol.38.2
- [44] A.Sato et al., Japanese Journal of Applied Physics, Vol.43, No.4A, 2004, 1593-1601
- [45] 阿部真悟, 修士論文 (平成 20 年度)
- [46] 市村晃一, 博士論文 (平成 19 年度)

謝辞

大学院の2年間、更に本研究をまとめるに当たり多くの方のご指導、ご協力を頂きました。この場を借りて感謝の意を述べたいと思います。

井上先生には KamLAND に携わるきっかけを作って頂き、感謝の気持ちでいっぱいです。学部の際に井上先生の講演を聞いていなければ、私は今ここには居らず全く違った人生を歩んでいたと思います。いつも超多忙にも関わらず相談に訪ねていくと時間を惜しまず適切なご指導をして頂き、その暖かなお人柄と研究に対する姿勢に触れることによって、常に楽しみ意欲を持って2年間を過ごす事が出来ました。本当にありがとうございました。池田さんには本研究の全てをみて頂き、池田さんのお力が無くしては成し得なかったと思います。感謝の言葉ありません。何かにつけ不慣れな私に嫌な顔せずに丁寧に教えて頂き本当にありがとうございました。学会発表当日の朝まで実験をするということになってしまった時は不眠不休で手伝って下さり、池田さんがいなければどうなっていたかと思うと、自分の不甲斐なさに愕然とし池田さんの偉大さにはただただ驚くばかりです。悪い風習を引き継がない様に、これからは計画的に準備し、いつも直前になってしまわないように十分気をつけます。

山口先生には茶道部に誘って頂き楽しみにしておりましたが、なかなか時間が合わず参加出来ず仕舞いでした。多彩なご趣味や研究のお話を伺いながらお茶を頂くのを楽しみにしております。北垣先生には本研究に興味をもって頂いた上に貴重な体験談と共にアドバイスを頂く事もでき、行き詰まっていた時期だったので大変励まされました。白井先生には授業を始めミーティングでのアドバイス、ガスクロ導入に関して等、数々の場面でいつも熱心にお話して下さいましたのが印象的です。また進路決定において重要な場面に立ち会って頂いたときには大変心強く、突然の申し出にも時間を割いて頂き大変感謝しております。三井さんには本研究に関して将来の目標を具体的にお話して下さい、常に先を見据え鳥瞰した視野でアドバイスを頂いたことがとても勉強になりました。古賀さんにはシフトトレーニングをして頂いた時の事が印象的です。その後もシフトやミーティング等での的を得た質問やアドバイスによっていつも自分の見えなかった部分に気付かせて頂きました。いつか神岡で鰻を食べに行くのを楽しみにしております。中村健悟さんにはこの場でお詫びしなければならないことがあります。ランクルを壊しても何も言わずに帰ってきてしまって申し訳ありませんでした。

岸本さんには本研究に関してもアイデアを頂くことがあり、大変勉強になりました。また蒸留中は PPO 濃度測定において、始めの頃に結果の信頼性をきちんと確認せずに報告してしまったことを今となってはとても恥ずかしく思います。PPO 濃度測定を通して蒸留の進行状況を目の当たりにすることが出来ただけではなく、研究に対する向き合い方等、本研究だけでは体験出来なかったことを沢山学ぶことが出来ました。ありがとうございました。玉江さんにはコンピュータ関係の事をいつも温かく教えて頂いただけでなく、サイエンスエンジェルとしての活動の場を与えて頂きました。三四郎さんにはドミトリーの予約でお世話になりました。また MoGURA のケーブルに関しても見て頂くことがありその頭の回転の早さにいつも感服しておりました。丸藤さんには学会直前で始めた実験にも快く知恵を頂いたり、実験器具を貸して頂いたりのご迷惑をおかけしました。これからはそのようなことの無いように気をつけたいと思います。清水さんには二重ベータ崩壊実験のシミュレーションのときにお世話になりました。質問に何うと質問した以上の事に関してアドバイスを頂け一歩も二歩も進んでしまうことに驚きと喜びが見出せ、とても楽しく出来たのは清水さんのお力のお陰だったと思っています。吉田さんにはガスクロ部顧問として数々のご迷惑をおかけし、行き詰まったときの論理的で適切なアドバイスにはいつも救われました。初期の頃に夜通しデータを取って測定方法を考えていった時は、食事や睡眠も取らずに一緒に向き合って下さり感謝しております。一生忘れません。本当にありがとうございました。またシフト中、細かなところも丁寧に説明して頂きいつも納得して作業に当たる事が出来ました。これからはおいしいものを見つけたら漏らさず報告させていただきます。田窪さんには一年間帰りのバスで一緒だったこともあり、

研究の話だけではなく進路の悩み等を体験談を交えて的確にアドバイス頂きました。田窪さんにお話出来たことでとても身が軽くなりました。

三浦さんを始め、大塚さん、遠藤さんには研究に必要な実験器具の購入や事務手続き等、大変お世話になりました。何不自由なく実験を進められ恵まれた環境にいたることができたのも皆様のお陰と感謝しております。技官の高山さん、花田さん、中嶋さんにはどんな些細な相談でも親身になって対処して頂きました。またお忙しいところ何度もガスクロ用のボンベの交換を頼んでしまったりと、ご迷惑をおかけしました。本当にありがとうございます。柿沼さんには掃除機をかける時にも一言声をかけて頂き、いつも恐縮してしまいました。明るいお人柄で隅々まで行き渡ったお掃除によって気持ちよく研究できる環境を常に保って頂き、本当に感謝しております。

岐部さんには研究のみならず、ご飯を食べに連れて行って頂いたり大変お世話になりました。何に対しても深い知識を持っておられることにいつも驚かされてしまいます。中島さんには、ニュートリノセンターに初めて来た時に説明して頂いたときの印象が強烈に残っています。また始めの頃にプログラムを教えて頂いたときは、意味まで詳細に説明して頂き抵抗無く自分でもプログラムを書くことが出来たのはそのお陰だと感謝しております。百合さんは席が隣ということで、研究だけではなく何気ない事でも楽しくお話することが出来ました。いつも良い気分転換になっており、今の席で本当に良かったと思っています。中村有希さんとはご飯を一緒に食べたりバスで一緒になることが多く、色々なことを話すことができました。

香西さんとはパーティション越しにお話することが多く、研究以外のことで親身になって聞いて頂き、楽しい時間を過ごすことができました。嶺川さんとは席が隣ですが一年間は殆ど神岡で過ごされ、とても寂しく思っておりました。これからは3人揃って過ごすことが出来ると楽しみにしております。

同期の皆さん、他大学から入ってきてこんなにも充実し、楽しく過ごすことが出来たのは皆さんが温かく迎えてくれたからだと思っています。本当にありがとうございました。励くんには物理や食べ物、お酒に関する深い知識に頼りきりでした。東京でも色々なお店を探索し、機会があったら教えて下さい。伊藤くんはお花見の時の印象が強く、今では良い思い出です。他大から加わってその能力の高さに驚愕していました。草野くんは飄々としている印象がありましたが、話始めると何に対しても自分の意見をきちんと持っていることが伝わってきていつも関心させられてしまいました。竹本君は学校滞在時間の長さや仕事の量、睡眠時間の少なさに本当に驚かされました。これからも今まで以上に大変になるかと思いますが、おいしいものを食べて頑張りましょう。亜寿紗ちゃんとは同じ液シン開発をテーマにしていたことや、ガスクロ組だったこと等研究で一緒になる機会が多く、数々の研究の困難を共有できたと思います。流暢な英語で発表する姿にはいつも驚かされてしまいました。米沢君には私の学会発表の為に神岡からでも色々教えてくれて、本当に心強かったです。もの静かな外見に秘めている一人でも迷わずに行動するその行動力に、色々な場面で驚かされました。阿部君とはガスクロ測定を始め、到来方向測定実験に関してもお世話になり本当に感謝しています。体験していない問題は無いという程トラブル続きだったガスクロでも、なんとかやって来られたのは阿部君の昼夜を問わない研究と努力の賜物です。到来方向実験でもレンズ研究の第一人者として頼りにしている阿部君がいなくなってしまうのは本当に寂しいですが、後を引き継いで頑張りますので遠くから見守っていて下さい。未生ちゃんは私が他大から来た当初から気軽に話しかけてくれて、とても安心して加わることが出来ました。どんなところでも楽しんでいる印象があり、未生ちゃんの様子に救われる思いだったことも何度もあります。太田君は液シン研究で色々教えてもらう度に、はっきりと丁寧で論理的な話し方に引き込まれてしまいました。社会でもその高い能力を生かし、頑張ってください。奈々ちゃんのはっきりと自分の意見を言うところが印象的です。研究室は変わってしまいますが、これからも一緒に頑張りましょう。

森川君は修論時期のガスクロ測定を一手に引き受けてくれ、本当に大変だったと思います。きちんと結果が出るまで諦めずに測定を続ける態度は見習うべきだと、いつも関心していました。永君、永井君、木村君も自分の研究等で忙しい中、長期の神岡シフトをこなしてくれ、皆さんの努力無くしては私の修論は完成出来なかったと思います。本当にありがとうございました。

最後になりましたが、常に支えてくれた祖父母、父、母、弟に心から感謝します。皆さん、本当にありがとうございました。