

修士論文

ニュートリノレス二重崩壊探索のための
キセノン含有液体シンチレータの特性研究

東北大学大学院理学研究科

物理学専攻

藪本 洋

平成22年

概要

二重ベータ崩壊とは、原子核中の中性子二つが同時にベータ崩壊し、電子2つと反電子ニュートリノ2つを放出して原子番号が2増える現象である。ニュートリノは標準理論では質量がない粒子とされてきたが、近年の Super-K や KamLAND でのニュートリノ振動の観測から、僅かながらも有限の質量を持つことが確実となった。しかし、ニュートリノ振動実験からは質量の絶対値を求めることはできず、また3種類のニュートリノの質量の順序も求めることができない。もしニュートリノが反ニュートリノと同一の粒子(マヨラナ型)であったとすると、二重ベータ崩壊の際に自分自身と対消滅してニュートリノの出ない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) という現象を起こしうる。この現象の発生率はニュートリノの有効質量の二乗に比例するため、 $0\nu\beta\beta$ を観測することでニュートリノの絶対質量や質量構造を解明することができる他、レプトン数非保存やシーソー機構、レプトジェネシスの検証など標準理論を越える物理への足がかりとなる。

$0\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期は原子核にもよるものの $10^{21} \sim 10^{25}$ 年以上と長く、崩壊エネルギーも数 MeV と低いため、大量のターゲットを低バックグラウンド環境で測定する必要がある。

本研究に用いる ^{136}Xe 原子は偶々核であるため、 $0\nu\beta\beta$ 探索の障害となる通常のベータ崩壊が起こらず、また同位体存在比率が高く濃縮が可能で、さらに希ガスであるため化学的な扱いも容易であるといったメリットをもつ。ニュートリノの有効質量を求める際の不定性の一因となる核行列要素の不定性も少ない。かくして既に極低放射能環境を実現し、大量のターゲットを導入可能な 1,000 トン液体シンチレータ検出器である KamLAND において、 ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験を行うために必要なキセノン含有液体シンチレータの開発・性能評価をおこなった。

具体的には、現在 KamLAND で用いられている液体シンチレータと同等の光透過率や発光量といった性能を継承し、かつ十分なキセノン溶解度をもつ新型液体シンチレータの組成を決定し、また装置の構造上の制約から、その密度を $\Delta\rho/\rho < 0.1\%$ の精度で決定しなければならない。

先に行われた研究によって、新型液体シンチレータの成分は現行のドデカンとブソイドクメンの混合液から、炭素数の2少ないデカンとブソイドクメンの混合液へと変更することが決定している。本研究では、この2成分の混合比による液体シンチレータへのキセノン溶解度の変化を測定した。また、液体シンチレータの液温や、それに接する気相部のキセノン分圧へのキセノン溶解度の依存性を測定し、実際の KamLAND 実験の環境下において、質量比で3%以上のキセノン溶解度が達成可能であることを示した。

一方、キセノンの液体シンチレータへの溶解にともなって液体シンチレータの体積が僅かに膨張し、その密度が両者の単純な和にならないことが判明した。そのため、キセノンの溶解に伴う体積変化を測定し、液体シンチレータの最終的な密度を調整するためのデカンとブソイドクメンの混合比を決定した。

以上の研究から、本論文によって KamLAND における $0\nu\beta\beta$ 探索実験 (KamLAND-Zen) に必要な新型液体シンチレータの開発が完了したと結論できる。

目次

第1章	はじめに	1
1.1	ニュートリノ	1
1.2	ニュートリノ振動	2
第2章	ニュートリノレス二重ベータ崩壊	6
2.1	ニュートリノの絶対質量にむけて	6
2.2	ニュートリノレス二重ベータ崩壊	8
2.3	マヨラナ質量とレプトン数保存則の破れ	10
2.4	二重ベータ崩壊が起こる原子核	11
2.5	主な二重ベータ崩壊探索実験	12
第3章	KamLAND-Zen 実験	17
3.1	KamLAND の紹介	17
3.1.1	概要	17
3.1.2	構造	18
3.1.3	液体シンチレータ	19
3.2	KamLAND-Zen	22
3.2.1	概要	22
3.2.2	バックグラウンド	25
3.2.3	エレクトロニクス	27
3.2.4	Xe 含有液体シンチレータ	28
第4章	液体シンチレータに対する Xe の溶解度特性	29
4.1	概要	29
4.2	課題	29
4.3	実験装置	31
4.3.1	構造	31
4.3.2	測定手順	35
4.4	ガスクロマトグラフによる検証	37
4.4.1	ガスクロマトグラフの原理	37
4.4.2	ガスクロマトグラフのキャリブレーション	38
4.5	Xe 飽和溶解度の成分依存性	40
4.6	Xe 飽和溶解度の温度依存性	41

4.7 Xe 飽和溶解度の分圧依存性	42
第 5 章 Xe 含有液体シンチレーターの密度変化	43
5.1 概要	43
5.2 プソイドクメンとデカンの混合	45
5.3 液体シンチレータへの PPO の混合	45
5.3.1 PPO 混合による密度変化	45
5.3.2 PPO 濃度と発光量の関係	47
5.4 液体シンチレータへのキセノンの溶解	47
5.4.1 概要	47
5.4.2 実験装置	48
5.4.3 測定手順	49
5.4.4 実験結果	50
5.4.5 考察	51
第 6 章 結論	52
付 録 A キセノン含有液体シンチレータの光透過長測定	1
A.1 概要	1
A.2 序論	1
A.3 実験装置	2
A.3.1 光源	3
A.3.2 回折格子・PMT	3
A.3.3 光学系	3
A.3.4 透過長測定容器	4
A.4 実験方法	5
A.4.1 キセノンランプの安定性	5
A.4.2 空気・水・超純水での性能評価	6
A.4.3 空気によるドライ・ラン測定	7
A.5 カムランド液シンの透過長測定結果	9
A.6 考察	9

第1章 はじめに

1.1 ニュートリノ

ニュートリノは1930年、原子核のベータ崩壊においてエネルギー・運動量・スピンの保存則を満たすために W. Pauli によって提唱された素粒子である。

$$n \rightarrow p + e^- + ? \quad (1.1)$$

ベータ崩壊とは、原子番号 Z の原子がベータ線（電子）を一つ放出し、原子番号が $Z+1$ に変化する現象である。このとき、(1.1) 式に示すように原子核中の中性子が電子一つを放出して陽子に変化する。崩壊の前後でエネルギーが保存するために、電子の運動エネルギーは崩壊前の原子核の静止質量から崩壊後の原子核と電子の静止質量を引いたものでなくてはならない。すなわち、電子の運動エネルギー K は

$$K = (M_Z - M_{Z+1} - m_e)c^2 \quad (1.2)$$

と書ける。原子核の質量は電子よりはるかに大きいので、電子の運動エネルギーは定まった値を取るはずである。(Fig. 1.1 右) しかし実際に測定された電子の運動エネルギーは、この値を上限とするなだらかなカーブを描いて分布していることが明らかになった。(Fig. 1.1 左)

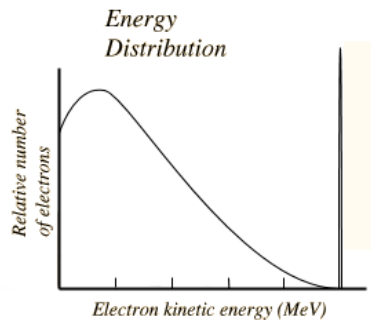


Fig. 1.1 ベータ崩壊における電子のエネルギー分布

この現象はエネルギーおよび運動量保存則を満たしていない。また、中性子は半整数、陽子と電子も半整数のスピンを持っているため、反応の前後ではスピンは半整数から整数へと変化してしまう。

これは角運動量保存則を破るものである。この矛盾を解決するために提案されたのが、電荷が無く、スピン半整数の粒子、ニュートリノである。

$$n \longrightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.3)$$

電子のエネルギー分布の上限が (1.2) 式の値近くまで広がっていることから、この粒子にはほとんど質量がないと考えられた。その後 1956 年に F. Reines らによって実際にニュートリノが発見されて以来¹⁾、有限の値としてニュートリノの質量が特定されたことは無く、トリチウムのベータ崩壊 (1.4) からの運動学上の値として上限値 2eV 程度が与えられるのみである。²⁾

$${}^3H \longrightarrow {}^3He + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.4)$$

そのため、従来の素粒子物理学における標準模型では、ニュートリノの質量はゼロであるとされてきた。ベータ崩壊を引き起こす弱い相互作用ではパリティの保存則が破られており、この力は左巻きのニュートリノにしか働かないとされている。

もしもニュートリノに質量があると、ニュートリノは光速よりも遅いので、これを追い抜く系から見るとヘリシティを反転することができる。すなわち、右巻きのニュートリノが存在し、弱い相互作用の非対称性が完全ではないことを意味する。また、ベータ崩壊において放出されるニュートリノに右巻きと左巻きの両方が存在し、ニュートリノがマヨラナ粒子であったとすると、左巻きのニュートリノは右巻きの反粒子であるため、レプトン数の非保存が生じる。

このように、ニュートリノに質量が存在することは従来の素粒子標準模型に修正を迫る必要があることを意味する。

1.2 ニュートリノ振動

1998 年のスーパーカミオカンデによる大気ニュートリノ、2002 年の SNO による太陽ニュートリノ、そして同年 KamLAND による原子炉ニュートリノの観測結果によって、ニュートリノ振動の存在が明確になり、その混合角や質量の二乗差が明らかになった。³⁾⁴⁾⁵⁾

ニュートリノには、その生成時に同時に生まれるレプトンに対応して、 ν_e, ν_μ, ν_τ の 3 種類 (及びその反粒子) が存在する。3 種類のニュートリノのフレーバー固有状態と質量固有状態 ν_1, ν_2, ν_3 が混合角 θ_{ij} をもち一致していない場合、ニュートリノがある距離を移動する間に他のフレーバーに変化してしまう現象、すなわちニュートリノ振動が起こりうる。簡単のために二種類のニュートリノ、 ν_e と ν_μ および質量固有状態 ν_1 と ν_2 が混合角 θ で混ざっているとすると、

$$\begin{pmatrix} \nu_\mu \\ \nu_e \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nu_1 \\ \nu_2 \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

とかける。質量の固有状態 $\nu_1(t), \nu_2(t)$ は $E_i = \sqrt{p^2 + m_i^2} (i = 1, 2)$ を用いて

$$\begin{cases} \nu_1(t) = \nu_{1(0)} e^{-iE_1 t} \\ \nu_2(t) = \nu_{2(0)} e^{-iE_2 t} \end{cases} \quad (1.6)$$

とかける。(1.5) 式より

$$\begin{cases} \nu_1 = \nu_\mu \cos \theta - \nu_e \sin \theta \\ \nu_2 = \nu_\mu \sin \theta + \nu_e \cos \theta \end{cases} \quad (1.7)$$

がいえて、 $t=0$ において $\nu_e(0) = 0, \nu_\mu(0) = 1$ であったとすると、

$$\begin{cases} \nu_{1(0)} = \nu_{\mu(0)} \cos \theta \\ \nu_{2(0)} = \nu_{\mu(0)} \sin \theta \end{cases} \quad (1.8)$$

である。(1.6) 式と (1.8) 式より

$$\nu_\mu(t) = \nu_{\mu(0)} \cos^2 \theta e^{-iE_1 t} + \nu_{\mu(0)} \sin^2 \theta e^{-iE_2 t} \quad (1.9)$$

であるから、 $t=0$ において ν_μ であった粒子がある時刻 t においても ν_μ である確立振幅は、(1.5) 式に代入して

$$\frac{\nu_\mu(t)}{\nu_\mu(0)} = \cos^2 \theta e^{-iE_1 t} + \sin^2 \theta e^{-iE_2 t} \equiv A_\mu \quad (1.10)$$

と表される。すなわち、ある時刻 t においてミューニュートリノであった粒子が依然としてミューニュートリノとして観測される確率 $P(\nu_\mu \rightarrow \nu_\mu)$ は

$$P = I_\mu(t)/I_\mu(0) = A_\mu^* A_\mu = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \frac{E_2 - E_1}{2} t \quad (1.11)$$

とかける。ニュートリノがほぼ光速で運動するとみなし、ニュートリノの質量自乗差を $m^2(eV^2)$ 、距離を $L(km)$ 、ニュートリノのエネルギーを $E(GeV)$ とするとこの式は最終的に

$$P = 1 - \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{1.27 \Delta m^2 (eV^2)}{E (GeV)} L (km) \right) \quad (1.12)$$

と書き直すことができる。これはたとえば $\Delta m^2 = 3 \times 10^{-3} eV^2$ のとき、 $E = 1 GeV$ の ν_μ は約 400km 走った時点で存在確率が最小となることを意味する。⁶⁾

このように、ニュートリノに質量が存在し、各々の質量固有値が異なる場合、あるフレーバーのニュートリノが空間を移動する間に別のフレーバーのニュートリノに混合角 $\sin^2 \theta$ を確率振幅として変化する

るという現象が説明できる。実際のニュートリノには3種類のフレーバーがあるので、それぞれのフレーバーの固有状態を $|\nu_k\rangle$ ($k = e, \nu, \tau$) とすると

$$|\nu_k\rangle = \sum_i U_{ki} |\nu_i\rangle \quad (1.13)$$

と表される。なお、ここでの U は MNS 行列といわれるユニタリー行列で、 c は \cos を、 s は \sin を、 δ は CP 位相を表している。

$$U = \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.14)$$

また、ニュートリノがマヨラナ粒子であった場合、(1.13) 式は

$$|\nu_k\rangle = \sum_i U_{ki} \begin{pmatrix} e^{i\alpha_1} & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\alpha_2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} |\nu_i\rangle \quad (1.15)$$

とあらわされる。ここでの α はマヨラナ位相とよばれる未知の定数である。

現在までに測定されている混合角および質量二乗差を (Table 1.1) に挙げる。

Table 1.1 ニュートリノの混合角と質量二乗差 (PDG 2010)

Parameter	Value
$\sin^2(2\theta_{12})$	$= 0.87 \pm 0.03$
Δm_{21}^2	$= (7.59 \pm 0.20) \times 10^{-5} eV^2$
$\sin^2(2\theta_{23})$	> 0.92
Δm_{32}^2	$= (2.43 \pm 0.13) \times 10^{-3} eV^2$
$\sin^2(2\theta_{13})$	< 0.15 (C.L.=90%)

ニュートリノ振動の観測によって、ニュートリノに有限の質量があることは確実となった。しかし、ニュートリノ振動からわかるのはその混合角と質量の二乗差のみであり、質量の絶対値やそれぞれの質量固有状態の大小の順序は不明である。

また、その質量の起源 (ディラック型かマヨラナ型か) も明らかではない。これらの疑問に直接の回答を与える可能性があるのが、次章に述べるニュートリノの出ない二重ベータ崩壊である。

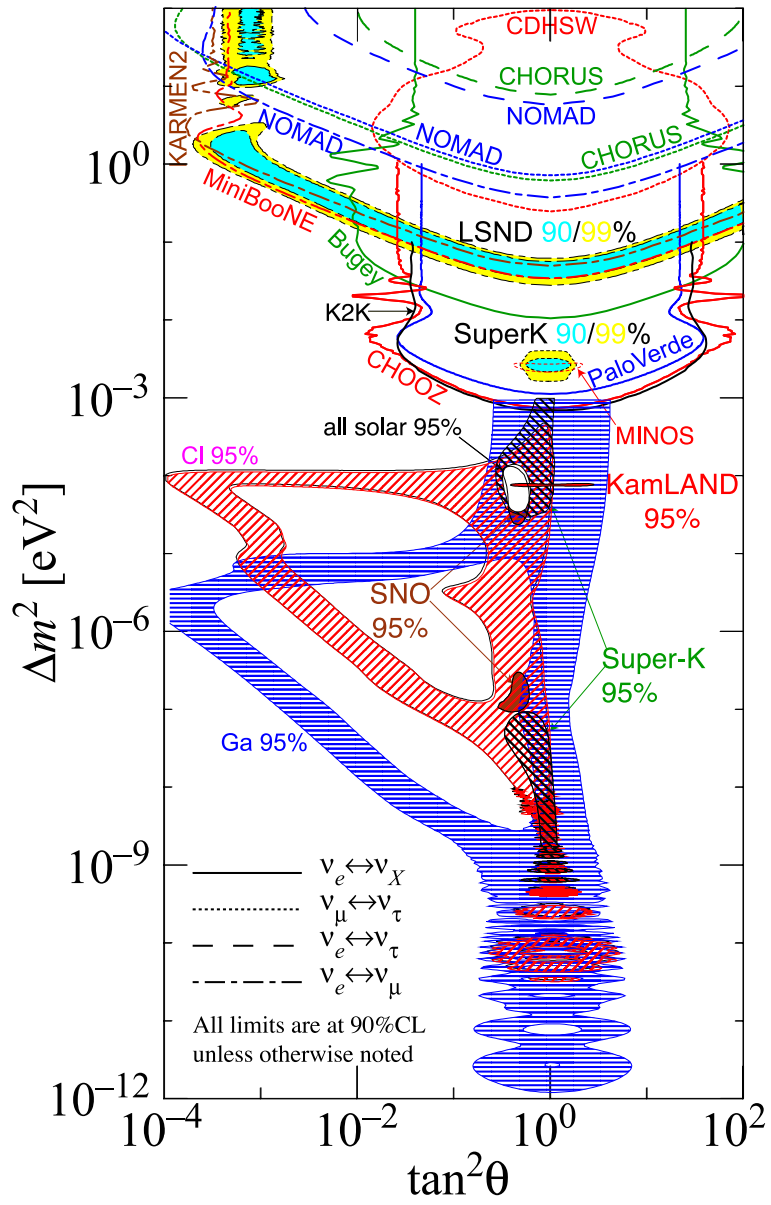


Fig. 1.2 これまでに明らかになったニュートリノ振動のパラメータ

第2章 ニュートリノレス二重ベータ崩壊

2.1 ニュートリノの絶対質量にむけて

ニュートリノ振動の観測によって、ニュートリノは質量を持つ粒子であり、混合状態にある、すなわち電子数やミュー数といった量子数は保存しないことが明らかになった。従来の標準理論はニュートリノの質量を認めず、フレーバー毎のレプトン数を保存するとしていたため、これは従来の標準理論を越える新しい理論を構築する必要があることを意味している。この新しい理論の試金石となるのがニュートリノの絶対質量、CP 位相、レプトン数保存則の破れ、そしてニュートリノの質量の起源、即ちニュートリノがディラック粒子かマヨラナ粒子であるかという問題である。

ニュートリノ振動の解析によって、ニュートリノの三つの質量固有状態の自乗差が明らかになったが、その順序はあきらかではない。すなわち $m_1^2 \sim m_2^2 \ll m_3^2$ なのか、 $m_3^2 \ll m_1^2 \sim m_2^2$ なのか、あるいは $m_1^2 \sim m_2^2 \sim m_3^2$ なのかはニュートリノ振動実験からは判断することができない。このニュートリノの質量の順序は階層構造とよばれ、前者を正常階層構造 (Normal Hierarchy)、後者を逆階層構造 (Inverted Hierarchy)、階層をなさず、ほぼ同程度の質量を持つ場合を準縮退構造 (Quasi Degenerate) と呼ぶ。

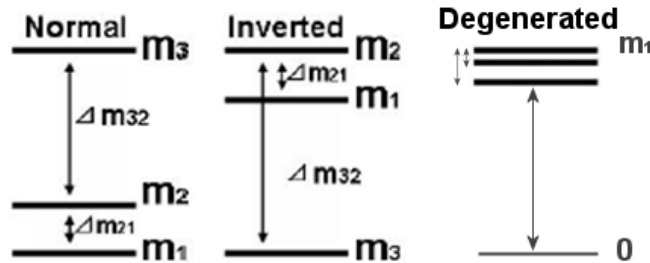


Fig. 2.1 ニュートリノの質量構造

ニュートリノの絶対質量の特定においてはまずこの質量構造の解明が急務とされる。ベータ崩壊において放出されるニュートリノの有効質量を

$$\langle m_\beta \rangle^2 = \sum_i m_i^2 |U_{ei}|^2 \quad (2.1)$$

とし、3種類のニュートリノの合計質量を M 、後述する二重ベータ崩壊の有効質量を (2.6) 式で定義すると、各質量と最も軽い質量固有状態との関係は (Fig. 2.2) のようになる。

すなわち (二重) ベータ崩壊におけるニュートリノの有効質量に上限を与えることで、質量の階層構造に制限を加えることが可能である。

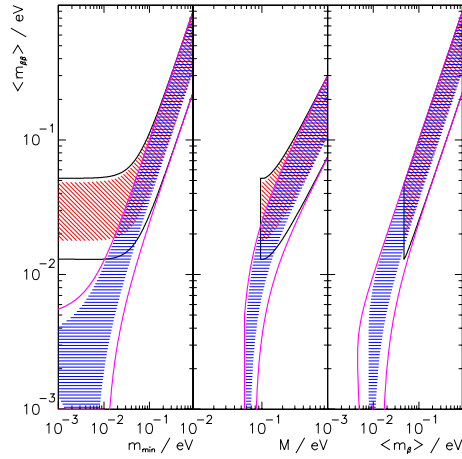


Fig. 2.2 最も軽いニュートリノと有効質量の関係 (PDG 2010)

このニュートリノの絶対質量および階層構造の解明に向けて近年行われている研究を以下に挙げる。

- ニュートリノ振動

前章で論じたように、質量の自乗差 (の絶対値) および混合角しかわからない。

- 通常のベータ崩壊

トリチウムのベータ崩壊から、 $\langle m_{\beta} \rangle^2 = \sum_i m_i^2 |U_{ei}|^2 < 2\text{eV}$ 程度の上限が得られている。

これは運動学的に求められる値なので、ニュートリノがディラック粒子かマヨラナ粒子かに依存しない。

- 宇宙論的制約

WMAP(Wilkinson Microwave Anisotropy Probe) による宇宙背景放射の非等方性の観測や、SDSS(Sloan Digital Sky Survey) による宇宙大規模構造からの初期宇宙の密度揺らぎの研究などから、3種のニュートリノの質量の合計 M_{ν} は $M_{\nu} = \sum_i m_i \sim 0.9 - 1.7\text{eV}$ 程度と見積もられており、Lyman- 及び BAO-SDSS の最新の成果を考慮すると、この値は $0.3-0.6\text{eV}$ まで下がると考えられている。⁷⁾

上に挙げた例以外にも、銀河系内での超新星爆発で放出されるニュートリノがその質量のために光よりも遅く到達することを利用する time-of-flight 法による測定によって、 $10-20\text{eV}$ 程度の上限を課すことができると提案されている¹ほか、パイオンの二重崩壊によってもミューニュートリノの質量が求められると考えられているが、いずれも他の実験ほどの測定精度は期待されていない。また、何れの実験もニュートリノの質量の起源、すなわちニュートリノの質量がディラック型なのか、マヨラナ型なのかを検証することはできない。これをあきらかにすると期待されているのが、次節に述べるニュートリノの出ない二重ベータ崩壊である。

¹ $\Delta t(E) = 0.514(m/E)^2 D m(\text{eV}) E(\text{MeV}) D(\text{kpc})$

2.2 ニュートリノレス二重ベータ崩壊

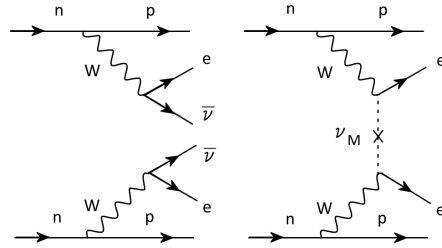


Fig. 2.3 $2\nu\beta\beta$ および $0\nu\beta\beta$ のファインマンダイアグラム

ベータ崩壊とは、1章で述べたように原子核中の中性子が陽子、電子、反電子ニュートリノに変化する現象である。一つの原子核中でベータ崩壊が同時に起きたとすると、この現象は質量数を A 、原子番号を Z として次のように書ける。(二重ベータ崩壊・Fig. 2.3 左)

$$(A, Z) \implies (A, Z + 2) + 2e^- + 2\bar{\nu}_e \quad (2.2)$$

これは弱い相互作用の2次の過程であり、標準理論の範囲内であるが非常に起こりにくい。位相空間因子を $G^{2\nu}(Q, Z)$ 、核行列要素を $M^{2\nu}$ とすると、二重ベータ崩壊による原子核の半減期 $T_{1/2}^{0\nu}$ は

$$\frac{1}{T_{1/2}^{0\nu}} = |G^{2\nu}(Q, Z)M^{2\nu}|^2 \quad (2.3)$$

と表すことができる。

さて、ニュートリノはスピン半整数のフェルミ粒子の一種であるので、ディラック方程式に従う。ニュートリノの質量が0であれば、 $E = |p|$ であり、解はヘリシティの固有状態になる。(ワイル解) $m \neq 0$ のときも、 m が E よりも十分に小さければ依然として解におけるヘリシティの成分は優勢である。したがって、通常は右巻きニュートリノと左巻きニュートリノは区別でき、別々の粒子であるように見える。しかし、 $m \neq 0$ であれば、ニュートリノの速さは光速を超えられず、これを追い抜く系が存在しうる。ニュートリノの進行方向に対して観測位置が変わると、ニュートリノのヘリシティが変化する。すなわち、右巻きのニュートリノと左巻きのニュートリノは同一の粒子であることになる。このような粒子をマヨラナ粒子という。マヨラナ粒子であるためには、荷電共役変換に対して不変である、則ち粒子と反粒子が同一のものである必要があり、これは電荷をもたないニュートリノにのみ許されうる特徴である。重要な点は、もしニュートリノがマヨラナ粒子であるとする、ニュートリノの反粒子もまたニュートリノであるため、自分自身と対消滅することが可能になるということである。則ち、二重ベータ崩壊において放出される2つのニュートリノが仮想的に対消滅して実際の反応には現れないということが起こりうる。これがニュートリノの出ない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) と呼ばれる現象である。(Fig. 2.3 右)

$$(A, Z) \implies (A, Z + 2) + 2e^- \quad (2.4)$$

(2.2) 式と比較して明らかなように、反応の前後で電子数のみならずレプトン数自体が2増えている。このように、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊は従来の標準理論では起こらないとされてきたレプトン数保存則の破れを生じる。さて、この反応による原子核の半減期は以下のように書ける。

$$\frac{1}{T_{1/2}^{0\nu}} = G^{0\nu}(Q, Z) |M^{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (2.5)$$

(2-3) 式と比較して、 $\langle m_{\beta\beta} \rangle^2$ という項が含まれている。ここで $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ はニュートリノの有効質量であり、

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle = \left| \sum_i m_i |U_{ei}|^2 e^{i\alpha_i} \right| \quad (2.6)$$

と定義される。 α_i はマヨラナ位相と呼ばれる因子で、未知の定数である。ニュートリノの質量は非常に小さいので、この現象は通常の二重ベータ崩壊と比して $10^7 \sim 10^8$ 倍起こりにくい現象であるが、もし観測できればニュートリノがマヨラナ粒子であることの直接の証拠となる。また、 $T^{0\nu}$ が $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ の関数であるため、ニュートリノの絶対質量を決定する上でも非常に高感度 (\sim 数十 meV) の実験が可能であるという特徴がある。

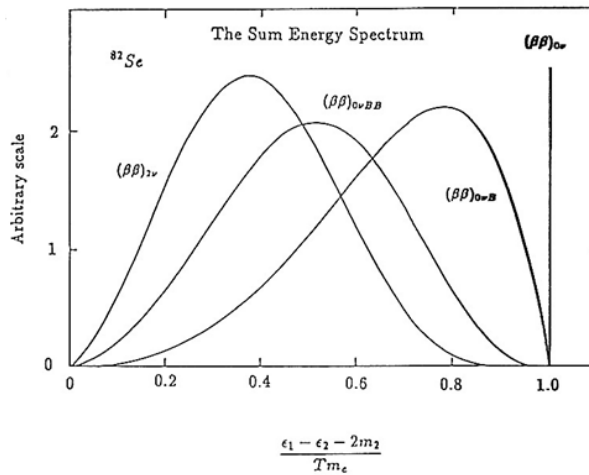


Fig. 2.4 各種崩壊のエネルギースペクトル・ ^{82}Se の例

通常の二重ベータ崩壊およびニュートリノレス二重ベータ崩壊における電子のエネルギースペクトルの例を (Fig. 2.4) に示す。このように、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊においては、電子は Q 値に等しい定まったエネルギーを持つ。なお、図中の他の2つは Majoron と呼ばれる粒子の放出を仮定したときの二重ベータ崩壊のスペクトルである。

2.3 マヨラナ質量とレプトン数保存則の破れ

$0\nu\beta\beta$ 崩壊の観測によって、ニュートリノの絶対質量、レプトン数保存則の破れ、そしてニュートリノのマヨラナ性が明らかになることがわかった。では、ニュートリノがマヨラナ粒子であったとすると何がいえるのか。通常のディラック粒子の場合、そのラグランジアンに現れる質量項 L_D は、右巻きのニュートリノの場を Ψ_R 、左巻きを Ψ_L として

$$L_D = -m_D \bar{\Psi}_R \Psi_L + h.c. \quad (2.7)$$

(h.c. は前の項のエルミート共役) とかけるのに対して、マヨラナ粒子ではたとえば左巻きのニュートリノの質量項 L_{mL} を

$$L_{mL} = -\frac{m_L}{2} \bar{\Psi}_L^c \Psi_L + h.c. \quad (2.8)$$

と書くことができる。右巻きの場合も同様で、このようにマヨラナ粒子では片方のカイラリティだけで質量項が作れるので、右巻きと左巻きの粒子に別々の質量を与えることが可能になる。このときのニュートリノのラグランジアンは、2個のマヨラナ場

$$N_1 = \frac{\Psi_L + (\Psi_L)^c}{\sqrt{2}}, N_2 = \frac{\Psi_R + (\Psi_R)^c}{\sqrt{2}} \quad (2.9)$$

に対して

$$L_\nu = \begin{pmatrix} \bar{N}_1 & \bar{N}_2 \end{pmatrix} (i\gamma^\mu \partial_\mu + M) \begin{pmatrix} N_1 \\ N_2 \end{pmatrix}, M = \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & M_R \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

と書くことができる。

ここでの m_D はディラック質量、 m_R と m_L はそれぞれ右巻きと左巻きのニュートリノ質量である。

ニュートリノの質量行列 M を対角化すると、左巻きニュートリノの質量は m_D^2/M_R と書くことができ、右巻きニュートリノの質量が大統一論のスケール (10^{16} GeV) にあると考えると、左巻きニュートリノの質量が極めて小さいことが自然に説明できる。これが1979年に Gell-Mann、柳田らによって提唱されたシーソー機構とよばれる仕組みである。

また、シーソー機構はレプトン数の非保存を预言する。右巻きの重いニュートリノがヒッグスとレプトン、または反レプトンへと崩壊するとき、CP 対称性の破れによってレプトンに多く崩壊したとすると、概して反応の前後でレプトン数が増えることになる。宇宙初期の温度が数百 GeV 以上の時期には、バリオンが反レプトンに変化する反応 (スファレロン過程) が平衡状態にあり、全バリオン数 B と全レプトン数 L の差が保存されていたと考えられている。重いニュートリノの崩壊によって反レプトン数が増えると、その後のスファレロン過程によってバリオン数が増えることになる。これがレプトン数非保存によって宇宙が物質優勢であることを説明するレプトジェネシスの考え方である。

2.4 二重ベータ崩壊が起こる原子核

KamLAND-Zen 実験において用いられる予定の $^{136}_{54}\text{Xe}$ は陽子数、中性子数ともに偶数の偶偶核と呼ばれる原子核である。Fig.2.5 にある基底状態 Z_0 まわりの偶偶核、奇奇核の質量と原子番号の関係を示す。偶偶核と奇奇核の放物線のズレは、偶偶核において2つの陽子同士、中性子同士が対エネルギーによって結びついていることによるものである。図から明らかなように、奇奇核の原子核 B はよりエネルギーの低い原子核 A に β^+ 崩壊で、また原子核 C に β^- 崩壊で変化することができる。しかし、原子核 A が B に β^- 崩壊すると、エネルギー保存則を破ってしまう。許されるのは、原子核 B を飛び越えて原子核 C に $\beta^-\beta^-$ 崩壊する場合である。

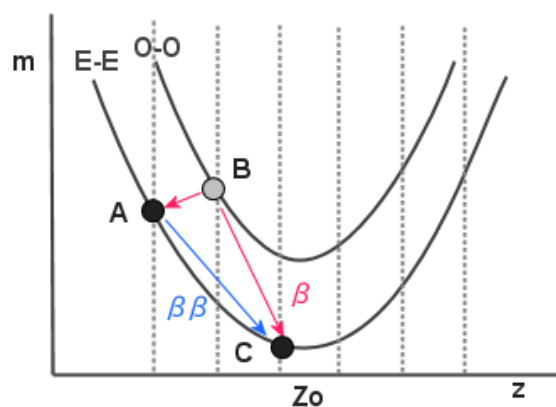


Fig. 2.5 mass parabola

このように、偶偶核の原子核では通常のベータ崩壊が起こらず、二重ベータ崩壊のみが許される。これは、偶然通常のベータ崩壊二つを同時に観測してしまうという可能性を排除するという点で、非常にバックグラウンドの低い観測を可能とする。Fig.2.6 に実際の ^{136}Xe の崩壊エネルギーを示す。 ^{136}Cs へのシングルベータ崩壊が禁じられていることが数値の上からも明らかである。

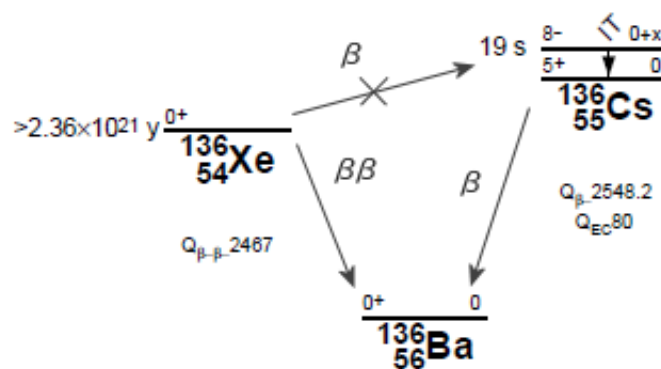


Fig. 2.6 Xe の崩壊図 LBLN ToRI (1999)

2.5 主な二重ベータ崩壊探索実験

以下にこれまで行われてきた主なニュートリノレス二重ベータ崩壊探索実験を紹介する。

- Heidelberg Moscow
86%に濃縮された ^{76}Ge 結晶 10.96kg を用いた半導体検出器による測定で、半減期 $T_{1/2}^{0\nu}(^{76}\text{Ge}) > 1.9 \times 10^{25}\text{yr}$ 、有効質量の上限 $|m_{\beta\beta}| < 0.35\text{eV}$ を得ている。イタリアグランサッソ山の地下 1400m(3600 m.w.e.) の LNGS(Gran Sasso Underground Laboratory) での実験で、エネルギー分解能 $\sim 3\text{keV}$ 、バックグラウンド 0.06 counts/(keV kg y) を達成している。⁹⁾
- KKDC claim
Heidelberg Moscow 実験の一部のメンバーが主張している解析結果で、同実験から半減期 $T_{1/2}^{0\nu}(^{76}\text{Ge}) = 2.23_{-0.31}^{+0.44} \times 10^{25}\text{yr}$ 、有効質量 $|m_{\beta\beta}| = 0.32 \pm 0.03\text{eV}$ を 6σ の統計精度で検出したと主張している。現在までにニュートリノの有効質量を具体的に特定した唯一の報告であるが、バックグラウンドの問題等によりこれに懐疑的な意見もあり、追加検証が待たれている。¹¹⁾
- DAMA
おなじく LNGS におけるクリプトンフリー ^{134}Xe 17.1%及び ^{136}Xe 68.8%の濃縮キセノン約 6.5kg を用いた実験で、8823.54 時間にわたる測定を行ったがいずれの $0\nu\beta\beta$ 崩壊も検出できなかった。この結果、半減期 $T_{1/2}^{0\nu}(^{136}\text{Xe}) > 1.2 \times 10^{24}\text{yr}$ 、有効質量の上限 $|m_{\beta\beta}| < 1.1 \sim 2.9\text{eV}$ を得ている。⁸⁾
- IGEX
Heidelberg-Moscow 実験と同じく、 ^{76}Ge 半導体結晶を用いた実験で半減期 $T_{1/2}^{0\nu}(^{76}\text{Ge}) > 1.57 \times 10^{25}\text{yr}$ 、有効質量の上限 $|m_{\beta\beta}| < 0.33 \sim 1.35\text{eV}$ を得ている。⁹⁾
- CUORICINO
 ^{130}Te 結晶を用いた極低温実験で、62 個の TeO_2 結晶、計 40.7kg を 8~10mK まで冷却し、 $0\nu\beta\beta$ のエネルギーによる温度上昇を計ることでこの現象を観測する。この実験でも $0\nu\beta\beta$ の証拠は検出できず、半減期 $T_{1/2}^{0\nu}(^{130}\text{Te}) > 3.0 \times 10^{24}\text{yr}$ 、有効質量の上限 $|m_{\beta\beta}| < 0.19 \sim 0.68\text{eV}$ を得ている。⁹⁾
- NEMO3
2003 年から 2006 年までフランスの Fréjus underground laboratory で行われている実験で、Neutrino Ettore Majorana Observatory の略である。 ^{100}Mo (6914g) や ^{82}Se (932g) をはじめとする 7 種の核種を円筒形の容器にいれ、25Gauss の磁場をかけて $0\nu\beta\beta$ の電子をドリフトチェンバーとプラスチックシンチレータによって検出しようという試みである。現在のところ現象は観測されておらず、 ^{100}Mo で $T_{1/2}^{0\nu}(^{100}\text{Mo}) > 5.8 \times 10^{23}\text{yr}$ 、 $|m_{\beta\beta}| < 0.6 \sim 1.3\text{eV}$ 、 ^{82}Se で $T_{1/2}^{0\nu}(^{82}\text{Se}) > 2.1 \times 10^{23}\text{yr}$ 、 $|m_{\beta\beta}| < 1.2 \sim 2.2\text{eV}$ の上限値を与えている。¹⁰⁾

このように KKDC claim を除き、現在までにニュートリノの有効質量が具体的に報告された例はなく、上限値を与えるのみとなっている。以下に現在準備中または計画中の主な次世代 $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験を紹介する。

- GERDA

GERDA(The GERmanium Detector Array) は Heidelberg Moscow 実験と同じく LNGS で行われている実験で、同実験で用いられた 5 つの ^{76}Ge 検出器 (有効質量 11.9kg) 及び IGEX 実験で用いられた検出器 3 つ (有効質量 6kg) を高純度の液体アルゴンに沈めて $0\nu\beta\beta$ を探索しようとするものである。第一期の GERDA phase I では $\sim 10^{-2} /(\text{kg keV y})$ のバックグラウンドを実現し、半減期 $T_{1/2}^{0\nu}(^{76}\text{Ge}) > 3 \times 10^{25}\text{yr}$ 、有効質量の上限 $|m_{\beta\beta}| < 0.27\text{eV}$ を得ている。第二期にあたる phase II では、22kg の濃縮 Ge 検出器を追加し、合計 40kg の Ge に対してもう一桁低いバックグラウンドを目標としている。これに対応する感度は $T_{1/2}^{0\nu}(^{76}\text{Ge}) > 1.4 \times 10^{26}\text{yr}$ 、 $|m_{\beta\beta}| < 0.11\text{eV}$ である。

- MAJORANA

米国・サウスダコタ州の Sanford Underground Laboratory の地下 1478m で行われる予定の実験で、86%に濃縮された ^{76}Ge 検出器 (有効質量 120kg) を用いて $|m_{\beta\beta}| \sim 100\text{meV}$ 程度の感度を目標としている。また、将来の 1ton クラスの検出器にむけた技術立証として、0.001 counts/(keV kg y) のバックグラウンドレベル達成を目指す。MAJORANA 実験へのデモンストレータとして、現在 7.66%の ^{76}Ge 、60kg を用いた検出器 MAJORANA DEMONSTRATOR が建設中で、高純度の電鍍によって得られた銅による冷凍機を使用するなどしてバックグラウンドの低減が図られている。¹²⁾

- CUORE

CUORICINO の発展系にあたる実験で、5cm 角の TeO_2 結晶 988 個、合計 741kg(うち、 ^{130}Te は 204kg) を用いてやはり温度の変化によって $0\nu\beta\beta$ を探索するものである。0.01 counts/(keV kg y) のバックグラウンドを目標とし、5 年間の測定での到達感度は $T_{1/2}^{0\nu}(^{130}\text{Te}) > 2.5 \times 10^{26}\text{yr}$ 、 $|m_{\beta\beta}| \sim 47\text{-}53\text{ meV}$ である。

- EXO-200,1000

Enriched Xenon Observatory の略で、現在 80%に濃縮された液体 ^{136}Xe 、200kg を用いた TPC(time projection chamber) 方式の検出器がニューメキシコ州の米国廃棄物隔離パイロットプラントに建設中である。現在の EXO-200 での到達感度は $|m_{\beta\beta}| \sim 150\text{meV}$ であるが、将来計画の EXO-1000 では 1 トンの ^{136}Xe を用い、崩壊後のイオン化した ^{136}Ba をレーザーによってタグするバリウムタグとよばれる方法によってバックグラウンドを劇的に低減することで、 $|m_{\beta\beta}| \sim 30\text{meV}$ までの探索を目標としている。

- NEXT

NEXT は Neutrino Experiment with a high-pressure Xe TPC の略で、その名の通り 90% に濃縮された高圧ガス状態の ^{136}Xe を用いた TPC 方式の検出器である。場所はスペインの

LSC(Laboratorio Subterráneo deCanfranc) で、2500m.w.e. 相当の地下に設置される。100kg の ^{136}Xe を用いて $|m_{\beta\beta}| \sim 100\text{meV}$ の感度を有する予定である。¹³⁾

- SNO+

SNO(Sudbury Neutrino Observatory) は重水を用いた水チェレンコフニュートリノ検出器として知られ、太陽ニュートリノ問題の解明で有名である。この検出器内部の水をネオジウム1トン(うち、 ^{150}Nd は56kg)を含む液体シンチレータと入れ替えて $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索に使おうというのが SNO+計画である。天然ネオジウム1トンのフェーズでニュートリノの有効質量 100meV。濃縮 ^{150}Nd を 500kg 用いた将来計画で 40meV の感度を目指す。

- Super-NEMO

Super-NEMO は NEMO3 の発展計画で、NEMO3 の約 10 倍にあたる 100kg の崩壊核を用いて $|m_{\beta\beta}| \sim 40 - 140\text{meV}$ 程度の感度を目指す実験である。¹⁴⁾

- CANDLES

大阪大学を中心に進められている実験で、 ^{48}Ca を CaF_2 の結晶として液体シンチレータ中にいれ、 $0\nu\beta\beta$ をすると考えられている核種中最大となる 4.28MeV の Q 値を活かしたバックグラウンドの無い測定を行おうというものである。これは、自然界には 2.6MeV のガンマ線および 3.27MeV のベータ線以上のエネルギーをもつ自然放射線が存在しないことによる。 CaF_2 はそれ自体が発光量の大きいシンチレータとして機能するという利点ももつ。課題として、 ^{48}Ca は自然存在比が 0.187% と小さく、濃縮が困難であるという問題がある。現在 CANDLES では、10cm 角の CaF_2 結晶 96 個、計 305kg を用いた技術検証が神岡鉱山で行われており、 $|m_{\beta\beta}| \sim 0.4\text{eV}$ 程度を目標としている。また、クラウンエーテルを用いた濃縮方法が開発中で、将来的には 1ton クラスの濃縮 ^{48}Ca を用いた更なる高感度の測定が計画されている。

- DCBA-T2,T3

Drift Chamber Beta-ray Analyzer の略で、日本の KEK 富士実験棟で建設が進められている飛跡検出型の実験装置である。 $0\nu\beta\beta$ によって放出される電子を一様な磁場中でらせん運動させ、その飛跡から運動量・エネルギーを求める。ガンマ線などの電荷をもたない放射線がノイズとならないためにバックグラウンドが低く、構造が単純なため大量の $0\nu\beta\beta$ を起こす親原子を装置に組み込むことができる。現在は小型の DCBA-T2 によって ^{100}Mo ソースプレートを用いた技術検証が行われており、その発展形である T3 実験装置も建設中である。将来的にはここで得られた技術を用いて 600kg の ^{150}Nd (80%濃縮) 等を導入し、ニュートリノの有効質量 20meV までの探索を目標としている。¹⁶⁾

Table 2.1 主な $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験

Experiment	Isotope	$T_{1/2}^{0\nu}$ (yr)	$ m_{\beta\beta} $ (eV)	Technique
Present results				
Nemo 3	^{100}Mo	5.8×10^{23}	$< 0.6\text{-}1.3$	tracking
	^{82}Se , etc.	2.1×10^{21}	$< 1.2\text{-}2.2$	
CUORICINO	^{130}Te	$> 3.0 \times 10^{24}$	$< 0.19\text{-}0.68$	bolometric
Heidelbergl-Moscow	^{76}Ge	$> 1.9 \times 10^{25}$	< 0.35	ionization
Klapdor et. al.	^{76}Ge	2.23×10^{25}	$0.32^{+0.03}_{-0.03}$	ionization
IGEX	^{76}Ge	$> 1.57 \times 10^{25}$	$< 0.33\text{-}1.35$	ionization
DAMA	^{136}Xe	$> 1.2 \times 10^{24}$	$< 1.1\text{-}2.9$	scintillator
Future experiments				
GERDA 2	^{76}Ge		< 0.11	ionization
MAJORANA	^{76}Ge		0.1	ionization
CUORE	^{130}Te		0.047-0.053	bolometric
SNO+	^{150}Nd		0.1 \rightarrow 0.04	scintillator
CANDLES 3	^{48}Ca		0.4	scintillator
Super NEMO	^{100}Mo , ^{82}Se , etc.		0.04-0.14	tracking
EXO-200,1000	^{136}Xe		0.15 \rightarrow 0.03	tracking
DCBA-T2,T3	$^{150}\text{Nd}?$?	tracking
NEXT-100	^{136}Xe		0.1	tracking
KamLAND-Zen	^{136}Xe		0.06 \rightarrow 0.025	scintillator

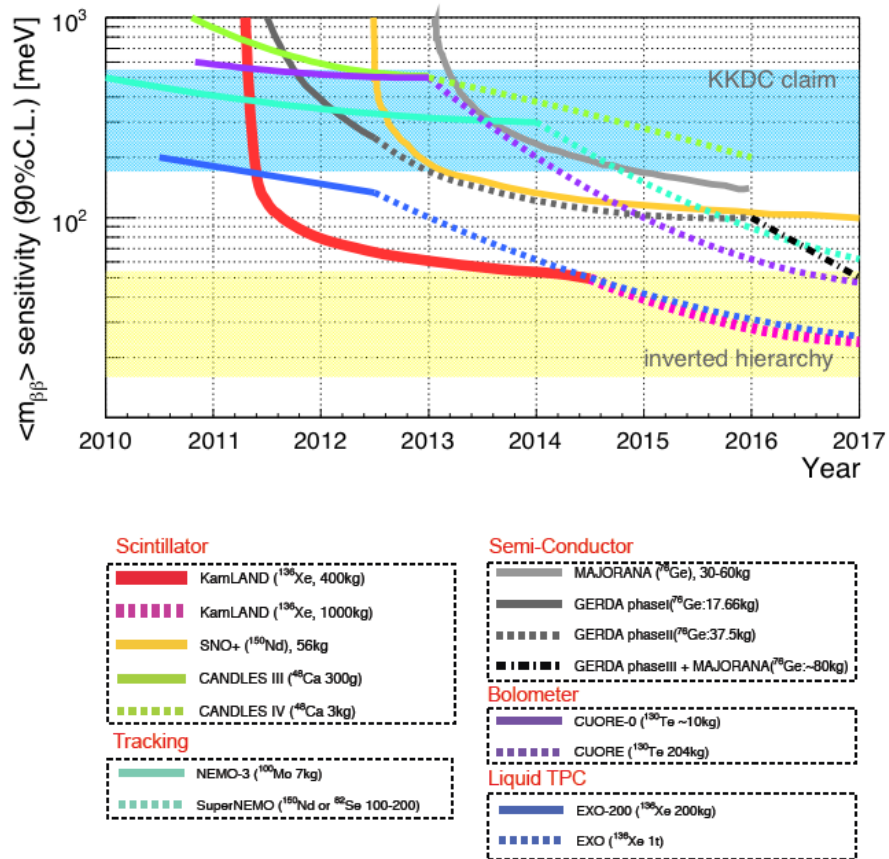


Fig. 2.7 計画中の主な二重ベータ崩壊探索実験の目標感度

第3章 KamLAND-Zen 実験

3.1 KamLAND の紹介

3.1.1 概要

KamLAND(Kamioka Liquid-scintillator AntiNeutrino Detector) は、岐阜県飛騨市神岡町の池ノ山頂下 1,000m に設置された 1,000 トン液体シンチレータ反電子ニュートリノ検出器である。水換算深度 2,700 m の地下深くに設置することにより、宇宙線由来のミュオンによるバックグラウンドを地上の十万分の一、約 0.34Hz にまで低減することに成功している。KamLAND は 1997 年より超新星ニュートリノの世界初検出でその名を知られる Kamiokande の跡地に建設がはじまり、2002 年に観測を開始した。

これまでに原子炉ニュートリノ振動¹⁷⁾の精密測定や、世界初となる地球内部起源のジオ・ニュートリノの検出¹⁸⁾などの成果を挙げており、原子炉起源ニュートリノのスペクトルの歪みを 5σ 以上の信頼度で示した (Fig. 3.1 左) ほか、これまでほとんど定量的に計ることができなかった地球内部の放射性物質による発熱量に 60TW の上限値を与えることに成功しているほか、2010 年のニュートリノ国際会議での発表では、標準的な地球モデルが予測する放射性的地熱出力 20TW に近い 16TW の地熱出力に相当する量のニュートリノを検出し、地熱 44TW すべてを放射性物質によって説明するモデルを排除することにも成功している。(Fig. 3.1 右)

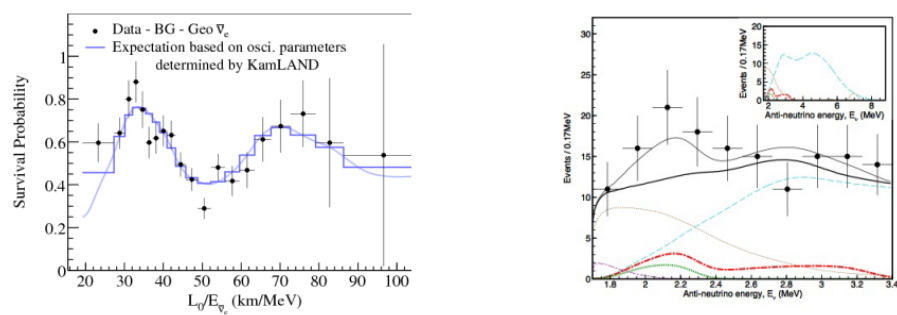


Fig. 3.1 原子炉からのニュートリノ振動 (左)、ジオ・ニュートリノの検出 (右)

3.1.2 構造

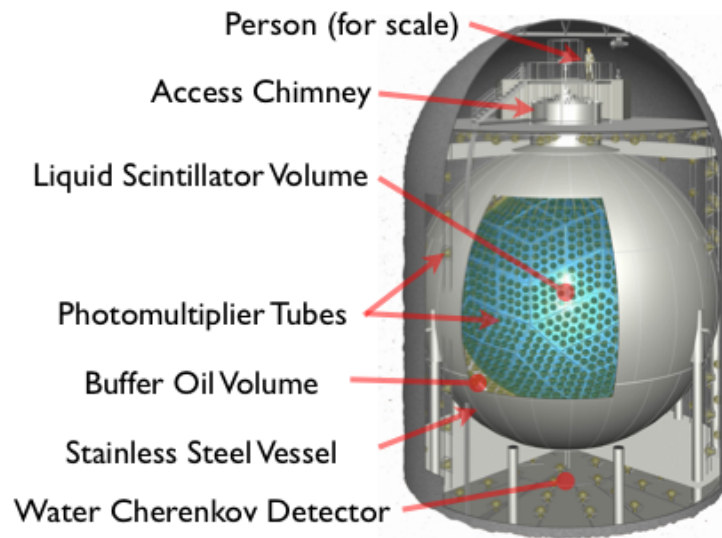


Fig. 3.2 KamLAND の構造

KamLAND の中核をなすのは中央に位置する直径 13m のバルーンに入れられた約 1,000 トンの超高純度液体シンチレータである。バルーンはナイロンと EVOH(エチレン-ビニルアルコール共重合体) を張り合わせた厚さ $135\mu\text{m}$ のフィルムで作成されており、十分な強度と光透過性 (94%以上) を持ち、外部からのラドン混入防止にも効果を発揮する。バルーンを検出器内に上部から吊り下げているのは 44 本の Kevlar 製ロープで、防弾チョッキにも使われる強靱な繊維でできている。バルーンの周囲はドデカン (43%) とイソパラフィン (57%) から成るバッファオイル (BO) に覆われており、内部の液体シンチレータとの密度差を $\Delta\rho/\rho = 0.04\%$ まで合わせることで、バルーンや Kevlar 製ロープにかかる負荷を最小限に抑えている。また、バッファオイルには周囲からの放射線がバルーン内に入るのを防ぐ効果もある。バッファオイルの外側にはラドンの混入を防ぐ厚さ 3mm のアクリル製の板と、直径 18m のステンレスタンク、そしてその内面を埋め尽くす 1879 本の光電子増倍管 (PMT) が備え付けられている。うち 554 本は旧 Kamiokande で使われていた 20inch の PMT, 残る 1325 本は KamLAND の為に新開発された 17inch の PMT である。これらの PMT による光電面被覆 (Photo Coverage) は 34%、エネルギー分解能は $\Delta E/E = 6.4\% \sqrt{E(\text{MeV})}$ とされている。

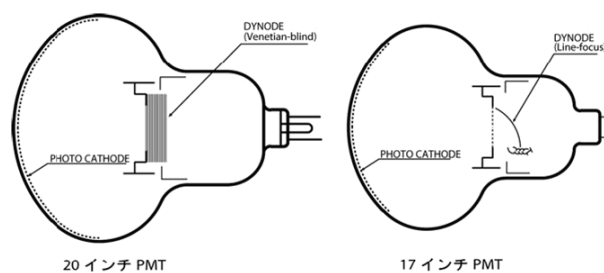


Fig. 3.3 KamLAND で用いられている光電子増倍管

ここまで示した装置がニュートリノに由来するシンチレーション光を捕えるための検出器の心臓部、ID(Inner Detector) とよばれる部分である。対して、ステンレスタンクの外側にはOD(Outer Detector) と称するシステムがあり、3.2 キロトンの超純水と 225 個の 20” PMT を水チェレンコフ検出器として用いて外部からのミュオンなどを識別している。なお、この超純水は超純水製造装置によって鉱内の地下水から常に新鮮なものを供給することで PMT などの発熱から装置全体を冷却する役割も負っている。

3.1.3 液体シンチレータ

KamLAND の最大の特徴は、エネルギーの低い反電子ニュートリノの検出のために Super-K のような水中でのチェレンコフ光ではなく、液体シンチレータによるシンチレーション光を検出原理としている点にある。液体シンチレータ中に入射した反電子ニュートリノは、液体シンチレータ中の水素原子との逆崩壊反応を経て、最終的に 2 本のガンマ線(先発信号)と中性子捕獲の際のガンマ線(後発信号)として検出される。おなじエネルギーのニュートリノに対して、シンチレーション光はチェレンコフ光と比べて約 100 倍の発光量をもつため、より低エネルギーのニュートリノを高いエネルギー分解能で検出することができる。現在の KamLAND で用いられている液体シンチレータの組成を以下に示す。それぞれの成分の配合比は、Dodecane(80%)、PC(20%)、PPO(1.36g/l) である。

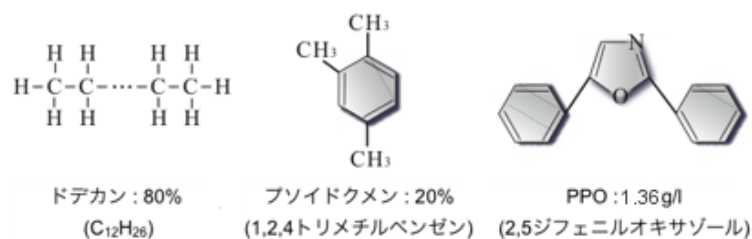


Fig. 3.4 KamLAND の液体シンチレータの成分

Table 3.1 LS 組成・物性表

	Decane	Dodecane	PC	PPO
Chemical formula	$\text{C}_{10}\text{H}_{22}$	$\text{C}_{12}\text{H}_{26}$	C_9H_{12}	$\text{C}_5\text{H}_{11}\text{NO}$
Molecular weight	142.28	170.34	120.2	221.25
Density g/cm^3	0.73392	0.75	0.87970	1.06
m.p.()	-297	-12	-43.9	72-74
b.p.()	174.2	215	169.4	360

液体シンチレータの成分においては、主に Dodecane が逆崩壊の媒体となる水素原子数を担っている。PPO(2,5-Diphenyloxazole) は発光剤で、線のエネルギーを受けて波長 400nm 付近をピークに持つシンチレーション光を発する。PC(Pseudocumene) は、ガンマ線のエネルギーを効率よく PPO に受け渡す触媒のような働きを担う。これは、ベンゼン環中の電子が効率よく溶媒分子間のエネルギーの受け渡しをするためであると考えられている。発光過程および反電子ニュートリノ検出のメカニズムを以下に述べる。

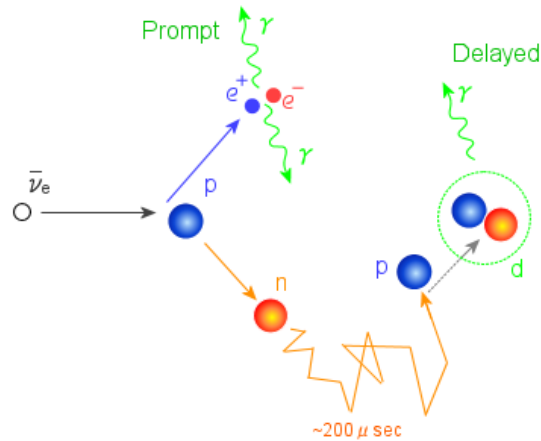
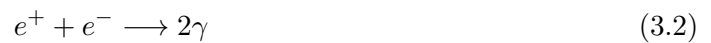


Fig. 3.5 KamLAND における反電子ニュートリノの検出原理

- 1. 入射した $\bar{\nu}_e$ が液体シンチレータ中の水素原子と逆崩壊を起こす。



- 2. 逆崩壊で生成した陽電子が液体シンチレータ中の電子と対消滅して、2本の線をだす。この線のエネルギーは、入射したニュートリノのエネルギーから中性子と陽子の質量、及び中性子の運動エネルギーを引いたものとなる。これを先発信号 (prompt signal) と呼ぶ。



先発信号のエネルギー E_{prompt} は、中性子の質量 M_n 、陽子の質量 M_p 、電子及び陽電子の質量 M_e 、電子の運動エネルギー E_k 、中性子の運動エネルギー E_n 、ニュートリノの運動エネルギー E_ν 、を用いて次のように書ける。

$$E_\nu = M_n - M_p + E_k + M_e + E_n \quad (3.3)$$

$$E_{prompt} = E_k + 2M_e \quad (3.4)$$

より

$$E_{prompt} = E_\nu - E_n + M_e - (M_n - M_p) \quad (3.5)$$

$$= E_\nu - E_n - 0.782(\text{MeV}) \quad (3.6)$$

- 3. 逆崩壊で生成した中性子は、その質量の大きさからほとんど運動エネルギーを持たないので、周囲の水素原子と弾性散乱を繰り返してエネルギーを落とし、最終的に熱中性子化して平均約 $200\mu\text{ sec}$ 後に中性子捕獲され、重水素となる。このとき、合計約 2.2Mev のガンマ線を放出する。これが後発信号 (delayed signal) である。

KamLAND では、後述するエレクトロニクスによって、これら先発する信号と後発する信号の位置関係や時間差を用いた反応の識別、遅延同時計測 (Delayed-Coincidence) を用いることで、偶発的なバックグラウンドを大幅に軽減することを可能としている。これは、ノイズとなる他の放射性核種についても用いられ、効果を挙げている。

また、KamLAND の液体シンチレータの特徴として、その極低放射能環境が挙げられる。液体シンチレータ中のウランやトリウムといった放射性元素を除去するため、KamLAND では液液抽出、窒素パージ、蒸留といった工程を経て、その含有量を以下に示す値にまで低減している。

Table 3.2 液体シンチレータ中の放射性不純物

Isotope	Amount
^{238}U	$3.5 \times 10^{-18} \text{ g/g}$
^{232}Th	$5.2 \times 10^{-17} \text{ g/g}$
^{40}K	$2.7 \times 10^{-16} \text{ g/g}$
$^{85}\text{Kr}, ^{210}\text{Pb}$	$< 0.1 \text{ mBq/m}^3$

液液抽出とは、液体シンチレータを超純水と混合し攪拌することで、イオン化傾向の大きい金属などの不純物を取り除く方法である。

また、液液抽出によって混入した水や、ラドンなどの気体の放射性元素を取り除くために窒素によるバブリングを行い、これを除去している。液体シンチレータに溶け込んだ酸素は蒸留過程で熱を加えた際に酸化物を生じ、発光量や光透過率の低下を招くので、これを除去する効果も期待される。

また、近年太陽ニュートリノの観測を目指して行われた液体シンチレータの蒸留によって、鉛などの液液抽出の難しかった不純物の除去も可能になり、バックグラウンドの大幅な低減を果たしている。なお、液体シンチレータ中の各原子核の種類と割合は以下の通りである。¹⁹⁾

Table 3.3 LS 原子組成

Element	Stoichiometry	Number of target(/kton)
H	1.97	8.47×10^{31}
C	$\equiv 1$	4.30×10^{31}
N	$1 \times 10^{-4} - 6 \times 10^{-4}$	$5 \times 10^{27} - 3 \times 10^{28}$
O	1×10^{-4}	5×10^{27}

3.2 KamLAND-Zen

3.2.1 概要

KamLAND-Zen 実験 (KamLAND Zero Neutrino Double Beta Decay Experiment) は、現在の KamLAND 検出器内部にニュートリノレス二重ベータ崩壊を起こすと考えられている原子核を導入し、ニュートリノの質量およびマヨラナ性についての研究を行うものである。2011年4月末から2年間の観測を 1st phase とし、90%に濃縮された ^{136}Xe 、400kg を用いてニュートリノの有効質量 $|m_{\beta\beta}| \sim 60\text{meV}$ までの探索を行う。その後の 2nd phase では ^{136}Xe の量を 1 トンに増やし、5年間で 25meV 程度までの探索を目標としている。

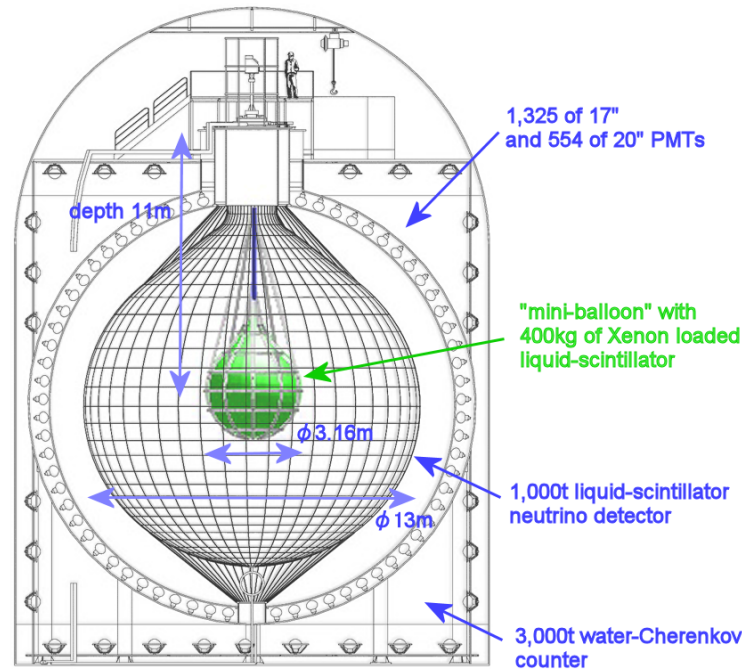


Fig. 3.6 KamLAND-Zen 実験

本論文では、この 1st phase に焦点をあてて実験を論ずる。Fig.3.6 に示すように、1st phase では 400kg の ^{136}Xe を含んだ新開発の液体シンチレータ約 6 トンを、ミニバルーンとよばれる直径 3.16m、厚さ 15~25 μm のナイロン (または EVOH) の単層膜に保持して観測を行う。期待される ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊は次の式で表される。



崩壊核として ^{136}Xe を利用するにあたっては、次に挙げるような利点がある。

- Q 値が比較的高く、 $2\nu\beta\beta$ の発生率が低い

多くの ^{238}U 崩壊系列から由来する環境放射線のエネルギーよりも Q 値が高いため、低バックグラウンドでの観測が可能である。また、 $2\nu\beta\beta$ による半減期が 10^{22} 以上 (未発見) と長いため、半導体検出器と比べエネルギー分解能の低いシンチレーション検出器である KamLAND においても、 $2\nu\beta\beta$ と $0\nu\beta\beta$ の識別が容易である。

Table 3.4 Q>2MeV の二重 崩壊核の比較

Isotopes	Q (KeV)	Abundance (%)	$T_{1/2}^{0\nu}(50meV)$	$T_{1/2}^{2\nu}yr$
^{48}Ca	4271	0.19		4.2×10^{19}
^{76}Ge	2039	7.8	0.86×10^{27}	1.5×10^{21}
^{82}Se	2995	9.2	2.44×10^{26}	0.92×10^{20}
^{96}Zr	3351	2.8	0.98×10^{27}	2.0×10^{19}
^{100}Mo	3034	9.6	2.37×10^{26}	7.1×10^{18}
^{116}Cd	2805	7.5	2.86×10^{26}	3.0×10^{19}
^{128}Te	867	31.7	4.53×10^{27}	2.5×10^{24}
^{130}Te	2529	34.5	2.16×10^{26}	0.9×10^{21}
^{136}Xe	2476	8.9	4.55×10^{26}	$> 10^{22}$
^{150}Nd	3367	5.6	2.23×10^{25}	7.8×10^{18}

- 同位体存在比率が高く、濃縮が可能

^{136}Xe は自然存在比が 8.7% と豊富に存在し、また常温で気体であるため熱拡散方式や遠心分離方式などの同位体濃縮方法が確立されている。濃縮の過程でラドンなどの他の放射性気体を取り除くことができる。

- 希ガスである。

キセノンは無色透明で化学的に安定な希ガスであり、液体シンチレータやバルーン、金属などを腐食しないため、取り扱いが容易である。人体に対しても、高濃度において麻酔作用が確認されているものの、基本的に無害で安全であるといえる。

- 核行列要素の不定性が小さい。

$0\nu\beta\beta$ 崩壊の発生率は

$$\frac{1}{T_{1/2}^{0\nu}} = G^{0\nu}(Q, Z) |M^{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (3.8)$$

と表される。ここでの $M^{0\nu}$ が核行列要素 (Nuclear Matrix Element) と呼ばれる値であり、原子核内部の構造から与えられるパラメータであるが、未解明の部分が多く様々なモデルが存在し、理論的な不定性が大きい。Fig.3.7 に現在広く用いられているいくつかの二重ベータ崩壊を起こすと考えられている原子核に対する NME の種類と不定性を示す。 ^{136}Xe は ^{96}Zr に次いで各モデルの値に近いことがわかる。この不定性は $2\nu\beta\beta$ の観測に成功すればさらに狭まる可能

性もある。 ^{136}Xe における NME の理論的不定性の小ささは、中性子数が魔法数であることに由来するといわれている。魔法数 (Magic Number) とは、2,8,20,28,50,82,126 といった数のことで、原子核中の中性子数や原子番号 (陽子数) がこの値である原子核は特に安定であるとされる。

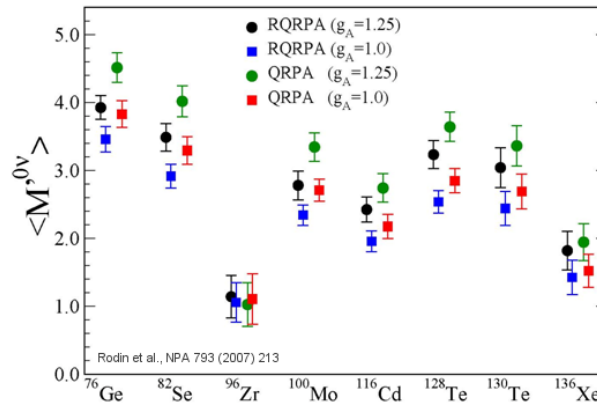


Fig. 3.7 種々の核行列要素

- 液体シンチレータに大量に溶け、回収も容易である。

一般に希ガスは有機溶媒によく溶けることが知られている。よく知られたベンゼンなどに対する溶解度の測定から、液体シンチレータに対しても質量溶解度 (wt.%) にして 2% 以上の溶解度が期待された。このことは、KamLAND の液体シンチレータ 1,000 トンすべてにキセノンを導入すれば、20 トン以上という桁違いの崩壊核を観測することも可能であることを意味する。既に原子炉ニュートリノ振動の精密測定や、世界初の地球ニュートリノ検出等の実績があり、世界でも稀な極低放射能環境・高分解能検出器の運用ノウハウを持つ KamLAND 検出器においては、大きな改造を施すことなく短時間に大量の崩壊核を観測することができ、大きな成果が期待できる。また、溶解したキセノンは窒素バブリングによって容易に回収できることが知られており、ブランク測定が可能であることや、費用の面でもメリットが大きい。さらに、他の ^{136}Xe をもちいた実験では、実験装置中の放射性不純物である ^{208}Tl の出す 2.6MeV のガンマ線がバックグラウンドとなるのに対し、KamLAND では液体シンチレータを用いているため、同時に放出されるベータ線のエネルギーと合わせて検出することで 3~5MeV 付近にエネルギーが分布し、 $0\nu\beta\beta$ 探索の障害とならないという利点も挙げられる。

このように、KamLAND における ^{136}Xe を用いた $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験 ; KamLAND-Zen 実験 (Zero Neutrino double beta-decay experiment) には、他の競合する次世代実験と比べても大きなアドバンテージがある。

3.2.2 バックグラウンド

KamLAND-Zen 実験で観測されると予測されるエネルギースペクトルを Fig.3.8 に示す。²⁰⁾ここでは二重ベータ崩壊のパラメータとして、 $T_{1/2}^{2\nu} = 10^{22}\text{yr}$ 、 $T_{1/2}^{0\nu} = 1.14^{24} \times (1\text{meV}/\langle m_{\beta\beta} \rangle)^2\text{yr}$ 、 $\langle m_{\beta\beta} \rangle = 150\text{meV}$ という仮定を用いている。

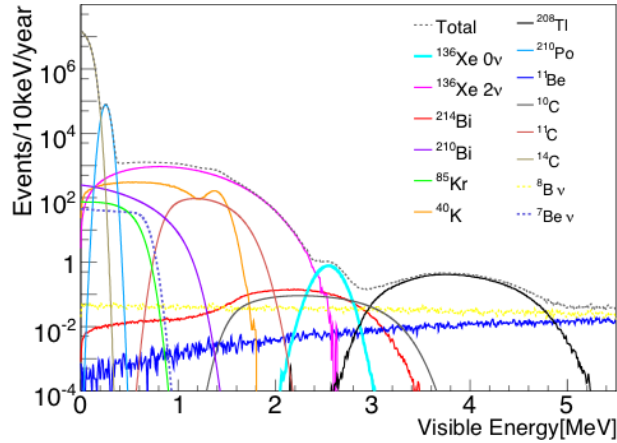


Fig. 3.8 予測されるエネルギースペクトル

Table 3.5 予測される一年あたりのイベント数

$^{136}\text{Xe } 2\nu$	^{208}Ti	^{214}Bi	^{10}C	^{11}Be	^8B	B.G. Total	$^{136}\text{Xe } 0\nu$
1.93	1.18×10^{-2}	3.15	2.44	0.20	1.18	8.93	17.79
± 0.15	$\pm 0.12 \times 10^{-2}$	± 0.01	± 0.01	± 0.01	± 0.02	± 0.21	± 0.02

バックグラウンドの評価として、液体シンチレータについては既存の KamLAND と同レベル (Table 3.2) を、ミニバルーンに含まれる放射性不純物は、バルーンの厚みを $25\mu\text{m}$ として以下の量を仮定に用いている。

Table 3.6 ミニバルーン中の放射性元素 (仮定値)

Isotope	Amount (g/g)
^{238}U	10^{-12}
^{232}Th	10^{-12}
^{40}K	10^{-11}

Table 3.5 に示すように、まず問題となるのは $2\nu\beta\beta$ のシグナルの染み出しである。これはエネルギー分解能を向上することで改善が見込めるが、現状では装置に大きな改造を施すことなくこれを向上することはむずかしい。また、 $2\nu\beta\beta$ の具体的な半減期も ^{136}Xe については過去に下限が測定され

た例が無い場合、控えめな見積りももちいている。

ついで問題となるのは、 ^{214}Bi に代表される ^{238}U 系列の崩壊核である。(Fig.3.9) ミニバルーンに含まれるウラン系列の放射性元素は、その崩壊過程で ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{214}Po 、 ^{210}Pb という一連の崩壊を平均 50 分程度で起こす。後述するエレクトロニクスによって、先発信号と後発信号の位置相関などからこの信号を識別 (tagging) して除去することができると考えられているが、ミニバルーン中の放射性不純物 ^{40}K が 10^{-11}g/g を超えると反応の識別が困難となることがわかっている。また、バルーンの厚みが増すと、 ^{214}Po の崩壊で生じる線がバルーンフィルムから出ることができず、tagging の障害となる。したがって、これらのバックグラウンドの除去のためにミニバルーンは厚さ $25\mu\text{m}$ 以下に制約され、いかにクリーンな環境で作成できるかの研究が 2011 年 1 月現在も続けられているところである。Fig.3.5 や Table3.5 の値は tag 成功率 88% のときの値である。

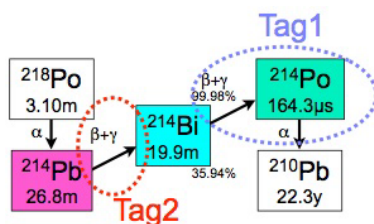


Fig. 3.9 ^{214}Bi Tagging

同じくエレクトロニクスによって 90% の除去が期待されているのが ^{10}C 由来のバックグラウンド (Fig. 3.10) である。これは高エネルギーのミューオンが液体シンチレータ中の炭素原子 ^{12}C に対して原子核破砕を起こし、中性子二つと ^{10}C に、さらに ^{10}C は ^{10}B に崩壊するという反応である。KamLAND ではこの宇宙線由来のミューオンによって、一日に約 20 個の ^{10}C が生成されている。これは中性子のタグによる除去が可能だが、検出器内部から常に生成されるバックグラウンドであって、実験の準備段階やその後の純化によって除去することは原理的にできない。またミューオンの通過後には大量のアフターパルスが起き、電子回路が大量の信号を受け取るために、デジタイズ中のデッドタイムの問題等から従来の装置では除去が難しかった。後述する新開発のエレクトロニクスによって、これら一連の反応の特定が可能になり、バックグラウンド除去に大きな効果を発揮するものと期待されている。²²⁾

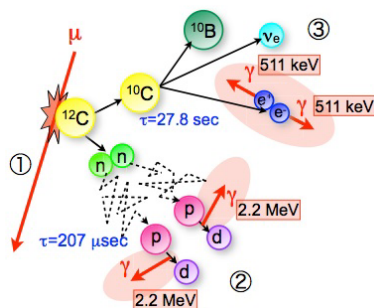
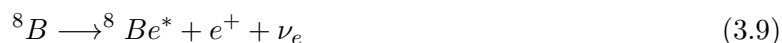


Fig. 3.10 ^{10}C 原子核破砕

^8B 太陽ニュートリノは、太陽の核融合反応によって作られた ^8B が以下のような崩壊によって放出した電子ニュートリノである。



このニュートリノは反電子ニュートリノではないため、KamLAND では逆崩壊を用いた遅延同時計測を用いることはできず、下記のような電子散乱によってシングルイベントとして記録される。



このバックグラウンドは原理的に除去することが難しく、崩壊核の量を増やさないと影響を低減することはできない。

3.2.3 エレクトロニクス

まず既存の KamLAND のエレクトロニクスについて述べる。

KamLAND は液体シンチレータからのシンチレーション光を用いて現象の観測を行う光検出器であり、その光は光電子増倍管 (PMT) を経て最終的に電気信号として記録される。

KamLAND が観測対象とするエネルギー数 MeV の事象では、PMT 一つあたりの出力は 1 photo electron(p.e.) 程度である。対して高エネルギーのミュオンによるシャワー現象が発生すると、PMT 一つあたり 1,000 p.e. を超える信号を出力することがある。また、PMT にはそれぞれ 1 p.e. の約 1/6 にあたる電圧に閾値が設けられているが、それでも一つの PMT の信号出力は数十～数百 Hz の頻度となる。PMT は全部で 2 千本近く存在するので、これらすべての信号を記録することはデータ量の観点から全く不可能である。したがって、物理的に意味のある事象からの信号だけを選択的にデジタル化して記録・解析を行う必要がある。

KamLAND のデータ収集系、通称 FEE(front-end electronics) ではまず PMT からの信号を 2 つにわけ、一方は信号の記録の是非を判断するためにトリガ回路とよばれるシステムが受け取る。信号を検出した PMT 数などから信号の記録が必要と判断されると、遅延して平行に信号を受けた ATWD(Analog Transient Waveform Digitizer) と呼ばれる回路が信号をデジタル化して記録にまわす。PMT からの出力のダイナミックレンジは $\sim 10^5$ にも上るため、事象の種類によって ATWD に送られる前に 0.5、4、20 倍の 3 段階にわけて増幅される。ATWD では 1.5ns 間隔で 128 区間に分けて 10bit の信号を記録するが、読み書きに毎回 $27\mu\text{s}$ の時間を要するため、二つの ATWD 回路を用意し、交互に使うことでデッドタイムを少なくするように工夫されている。

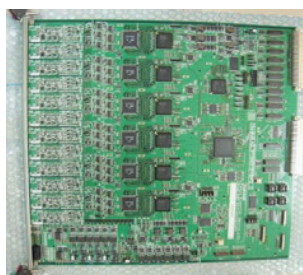


Fig. 3.11 デッドタイムフリーデータ収集回路 MoGURA

KamLAND-Zen 実験においては、前節で述べたように高エネルギーのミュオンによる原子核破砕で生まれた ^{10}C の信号をバックグラウンドとして識別・除去する必要がある。これにはミュオン由来の大信号の全体像を把握できる広いダイナミックレンジと、ミュオン通過の膨大な光電子数の信号の中から同時に生成する中性子捕獲の微弱な信号を識別できる分解能と ^{10}C の 27.8sec という長い寿命の間にわたって絶え間なく信号を記録し続ける不感時間の無いデータ処理系が必要である。このため、KamLAND-Zen 実験では不感時間の無い新型デッドタイムフリーデータ収集回路 MoGURA (Module for General-Use Rapid Application) が開発された。MoGURA では、信号のデジタル化に FADC (Flash Analog Digital Converter) を使用し、広いダイナミックレンジ、高い分解能、デッドタイムフリーといった要求に応えている。FADC の仕様を以下に示す。²¹⁾²³⁾

Table 3.7 FADC 仕様

Gain Ch	P	H	M	L
ADC	1GHz 8bit	200MHz 8bit		
Range	+5 ~ -20mV	+25 ~ -100mV	+250m ~ -1V	+2.5 ~ 10V
Resolution	0.1mV	0.5mV	5mV	50mV

3.2.4 Xe 含有液体シンチレータ

KamLAND-Zen 実験の心臓部ともいえるのが、90%に濃縮された 400kg の ^{136}Xe を含む新型液体シンチレータと、それをつつむミニバルーンである。

前節で述べた ^8B のバックグラウンドは液体シンチレータの体積に比例するため、観測対象は小さいほうがよい。即ち、用意できる Xe の量は限られているので、液体シンチレータに対する Xe の溶解度はできるだけ高めたい。したがって、KamLAND-Zen 実験にあたってまず明らかにすべき値は、液体シンチレータに対する Xe の溶解度である。安全に実験を遂行するには、温度変化や圧力変化に対する Xe 溶解度特性の調査も必要である。これを次章に述べる。

次に、液体シンチレータの密度を最適化する必要がある。ミニバルーンは厚さ 15~25 μm のナイロンまたは EVOH 膜であり、その強度上の問題からバルーン内外の液体シンチレータの密度差は $\Delta\rho/\rho < 0.1\%$ に抑えたい。現在 KamLAND で用いられている液体シンチレータ (KL-LS) は PC (Pseudocumene) と N-12 (Dodecane) を 2 : 8 の比率で混合したものであるが、既存の LS に Xe を溶かすと密度差が大きくなってしまい、設計要求を満たさない。そのため N-12 に変わって、分子量の小さい N-10 (Decane) を用いることが決定された。新型の Xe 含有液体シンチレータ (Xe-LS) の密度は、この軽い N-10 と重い PC の比率によって調整されることになるが、Xe の溶解に伴って溶媒である Xe-LS の体積が僅かに膨張し、密度の計算が単純な加算の関係には無いことが研究の過程で明らかになった。したがって、第 5 章ではこの溶質の溶解に伴う溶媒の密度変化についての研究成果を述べる。

第4章 液体シンチレータに対する Xe の溶解度特性

4.1 概要

前章で述べたように、KamLAND-Zen 実験を行うにあたって、液体シンチレータの組成や体積、バルーンの直径などの仕様を決定するためには液体シンチレータに対する Xe の溶解度を測定することが不可欠である。先に行われた研究²⁴⁾によって、KamLAND-Zen 実験用の Xe 含有液体シンチレータ (Xe-LS) の成分は PC(Pseudocumene) と N-10 (Decane) を約 2 : 8 の割合で混合したものが適切であるとされ、また Xe の溶解度は室温 (22) において 2.55 (wt.%) であるとされている。

本論文ではこの研究をさらに進め、より詳細な条件設定下での Xe 溶解度特性を調べるとともに不定性を廃し、測定精度を高めることに成功した。

4.2 課題

研究を行うにあたっての課題は以下の通りであった。

- 成分依存性の検証

次章で述べる密度調整を行うために、Xe-LS の成分である PC と N-10 の混合比はこの研究の時点では未確定であった。そのため、混合比を変更しても十分な Xe 溶解度を確保できるように、各成分毎の Xe 飽和溶解度を調べる必要があった。

- 温度管理

既存の実験には温度管理機構がなく室温での測定値しかいないため、溶解度の温度依存性が明らかでない。一般に気体の溶解度は温度の逆数に比例するとされている。¹安全に実験を行うためには、Xe 飽和溶解度の温度依存性の情報が必要である。

- 気密性及び圧力管理

既存の実験では液体シンチレータを収容した容器は大気中に解放されており、気相部の圧力管理ができない。また、キセノンの溶解作業時に溶媒である液体シンチレータの成分が気化して測定結果に誤差を与える可能性があった。

- 文献との不一致

PC 等の有機溶媒に対する Xe の溶解度については資料が少なく、見つかった文献²⁵⁾の値は誤差が大きく、また実験も 70 年代に行われた古いものであった。この文献値と先行する研究²⁴⁾の間には不一致がみられ、再度検証する必要が生じた。

¹近似的には成り立つが、厳密には P41 (4.3) 式に従う。

(Fig. 4.1) に、従来の Xe 溶解度測定方法を示す。

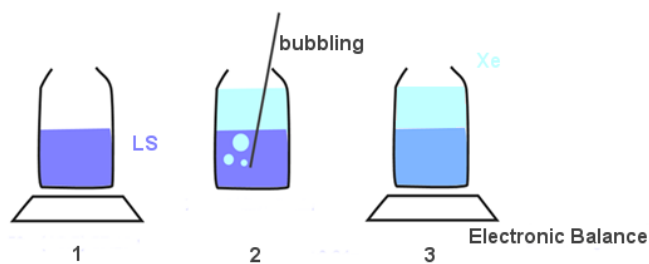


Fig. 4.1 バブリング法による Xe の溶解

- (1) まず、約 200cc の容積をもつガラス製バイアルに定量の LS を入れる。
- (2) ここに、バブラーと呼ばれる多孔質のガラス管からキセノン溶解させる。
- (3)十分に飽和したところで、前後のバイアルの質量を電子天秤で量る。

というものである。バブリングに伴う溶媒の気化や、気相部の Xe 重量についても考慮されているものの、前述のような課題を解決できるものではない。

この手法は、KamLAND-Zen と同じく液体シンチレータ（成分は PC のみ）と ^{136}Xe を用いて $0\nu\beta\beta$ 崩壊の探索を計画していたイタリアの BOREXINO 実験に関する研究²⁶⁾でも用いられていた手法である。

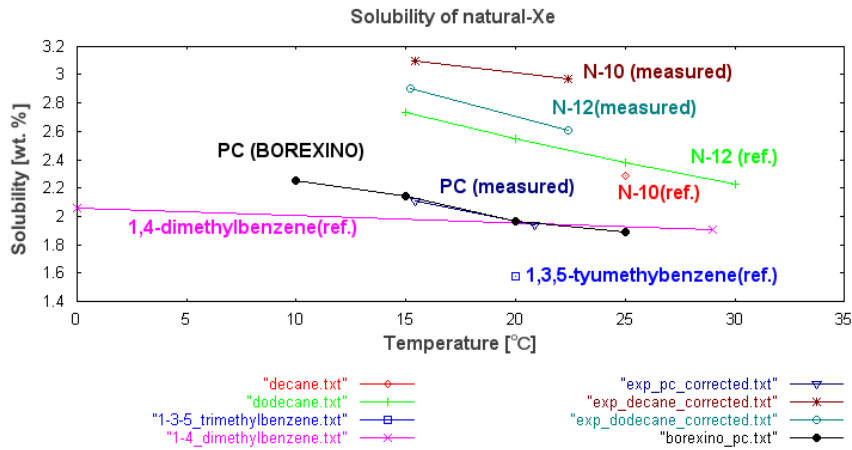


Fig. 4.2 文献値とバブリング法による実測値の比較

(Fig.4.2) に、IUPAC Solubility Data Series Vol.2 における文献値と、BOREXINO 実験に関する研究からの参考値、そして上記のバブリング法によって実際に計測した値を示す。PC に対する Xe の溶解度は同じ手法を用いていることもあり、BOREXINO 論文と今回計測した値はほぼ一致しているが、他の有機溶媒に対する値は文献値と大きくずれていることがわかる。構造が似ている物質として、他のメチル化ベンゼンに対する溶解度も併記した。なお、BOREXINO での測定は気圧 900mbar 下で行ったものなので、ヘンリーの法則を用いて 1 気圧下での値に補正したものを図中に示した。

4.3 実験装置

4.3.1 構造

前節に挙げた課題を解決するために、新たにLSへのXe溶解度測定装置を製作した。構造を (Fig.4.3) に示す。

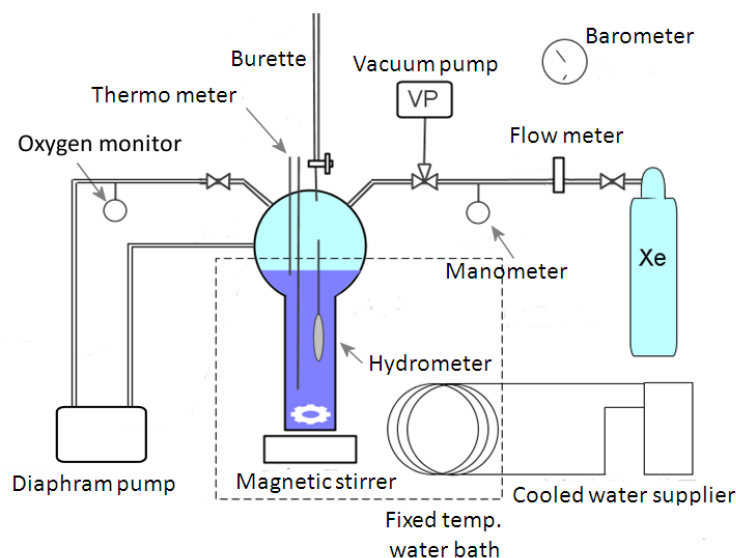


Fig. 4.3 Xe 溶解度測定装置

中央の前方後円墳状の断面をしたガラス容器がこの装置の中心である。このガラス容器には、上部のビュレットから100mlずつ合計500mlの液体シンチレータが内部に導入される。ガラス容器の内部には2本の水銀棒状温度計が備えられ、 ± 0.2 以内の精度でLSの上下の温度を測ることができるほか、浮沈式の密度計によってLSの密度を測ることができる。また、磁気攪拌機(スターラー)によって内部のLSを攪拌し、温度差や密度差を最小限に抑えている。ガラス容器の特異な形状は、浮沈式密度計に十分な水深と、キセノンの溶解を促進するための表面積の両立を図ったものである。装置全体は密閉され、冷却水製造装置によって温度管理された恒温水槽に入れている。装置内に導入されたXeの物質量は、質量流量計や差圧計、酸素濃度計、大気圧計によって較正されている。これについては4.3.2節で述べる。また、気相部のガスの循環や、実験前の装置内の真空引きのために、ダイヤフラムポンプ2基を設けた。この装置によって、任意の組成の液体シンチレータを正確に温度管理された状態で0.1wt.%の精度で測定できるようになった。また、重量ではなく機密性の高い容器内に導入したXe体積を測定するために、精度の高い測定と正確な分圧管理が可能になった。以下にそれぞれの装置について詳細を述べる。

- 質量流量計 (Flowmeter)

コフロック製 MODEL8500 マスフローコントローラ/メータを用いた。500SCCM(Standard Cubic Centimeter per Minute)の流量に対して $\pm 0.1\%$ の精度でキセノンの流量を計測できるように較正された熱式質量流量計である。なお、ここでのSCCMは温度20 のときの値

(ANR;Atmosphere Normale de Reference) を基準としている。

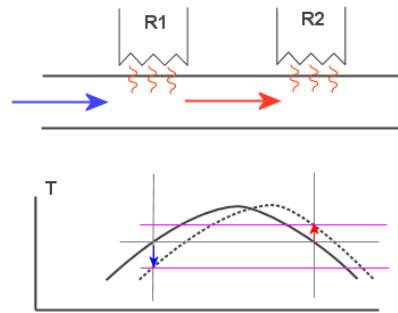


Fig. 4.4 熱式質量流量計の原理

黒線が平衡時。点線が気体が行っているときを示す。

平衡時との温度分布のズレを検出することで質量流量を求める。

熱式質量流量計とは、気体の流路の全部、または一部にパイパスを設け、ブリッジ接続された二つの発熱体を流路の上下に設置したものである。気体の質量流量に応じて上流の発熱体は冷却され、下流の発熱体は加熱されることになる。(Fig.4.4) 気体が行っていない時との温度差によって発熱体の抵抗値が変化するため、これをブリッジ回路で検出して質量流量を求めることができる。今回の実験では、積算流量計として用いた。最大 10,000cc までの計測で誤差 10cc 以下の精度を持つ。

- 差圧計 (Manometer)

大気圧との差圧から装置内の絶対圧を求めるために、日本電産コパル電子製ハンディマノメータ PG-102GP を使用した。最大 100kPa の差圧に対して $\pm 0.5\%F.S. \pm 2digit$ の測定精度を持つ半導体感圧素子を用いたデジタルマノメータである。

- 大気圧計 (Barometer)

三王製アネロイド気圧計 SBR-151 を用いた。アネロイド式気圧計とは、内部を真空にした金属容器が大気圧によって変形することを利用して圧力を測定する装置である。気温によって金属が熱膨張するため、温度計を内蔵し、自動的に温度補償されるように作られている。905~1055hPa までの範囲で誤差 $\pm 2hPa$ 以内の精度を持つ。

- 酸素濃度計 (Oxygen monitor)

ジコー製 JKO-O2LJD を用いた。ガルバニ電池式の酸素濃度計で、低濃度と高濃度の 2 つのレンジで酸素濃度を測定できる。分解能は 0.01%、測定精度は低濃度 (0.00~9.49%) で $\pm 0.1\%$ 、高濃度 (9.5~100%) で $\pm 0.5\%$ である。ガルバニ電池式とは、イオン化傾向の異なる二種類の金属を電解液につけ、隔膜で電解液と外部を隔てた構造の装置である。隔膜を通過して電解液中に拡散した酸素濃度によって、二枚の金属の間に生じる電圧が変化する。この値を用いて、大気中の酸素濃度を計測する。

- 精密水銀棒状温度計 (Thermometer)

一般的に用いられる水銀の温度膨張を利用した温度計である。JIS 規格によって最小目盛り 2 つ

以下の誤差であることが保証されており、今回の測定では測定精度 ± 0.2 として誤差を見積もった。なお、製品に添付されている検査証明書には、最小目盛り以下の 0.01 度までの精度が保証されている。

- ビュレット (Burette)

液体シンチレータの計量に用いた。計量誤差は $100\text{ml} \pm 0.1\text{ml}$ で、5 回の計量を行ったので全体として $500\text{ml} \pm 0.2\text{ml}$ である。

- 浮沈式密度計/比重計 (Hydrometer)

浮ひょう式の標準比重計を用いて液体シンチレータの密度を 0.001g/cc の精度で測定できるように設計した。但し、表面張力や気体の Xe の密度の問題等から今回の装置での精度には疑問があり、密度の測定には次章で述べる別の実験装置を使うこととなった。

- 恒温水槽と冷却装置

柴田製作所製 COOLMANPAL C-305 冷却水供給装置を用いて装置を室温以下に冷却した。冷却装置単独では水温の変動が激しいため、恒温水槽に貯めた 40 リットル程度の一次冷却水に二次冷却水の流れる配管を通すという間接冷却のシステムを用いて水温の変化を緩衝できるように設計した。

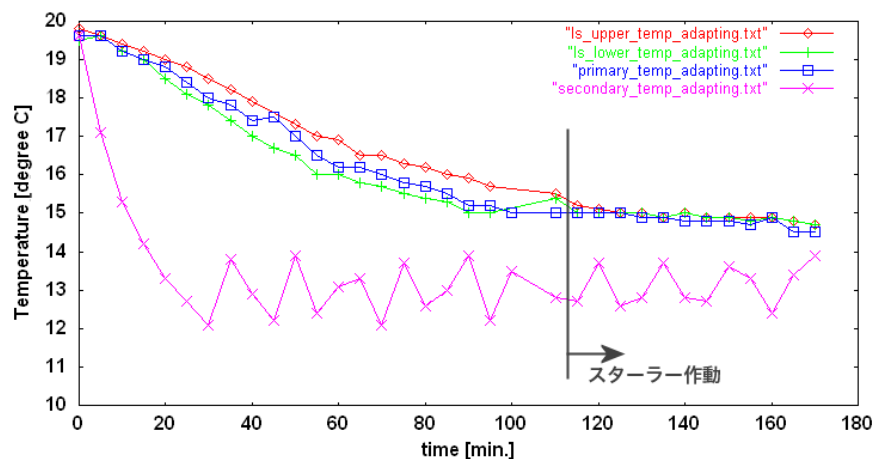


Fig. 4.5 装置の温度安定性

(Fig.4.5) にガラス容器を冷やしている一次冷却水 (青)、冷却水供給装置によって供給される二次冷却水 (紫)、装置内の LS の上部 (赤) および下部 (緑) の温度を示す。冷却装置から供給される水温は激しく変動しているが、緩衝作用によって一次冷却水の温度は設定値である 15 に安定して収束していることがわかる。冷却開始から約 2 時間後にスターラーを作動させたことによって、装置内の LS の上下温度差も解消されていることも読み取れる。温度の記録は前述の水銀温度計によって目視で行った。

- ガラス容器

東北大学理学研究科・理学部 硝子機器開発・研修室に製作を依頼した特注の実験容器で、真空引きに耐える強度を持ち、三つの SPC-15 規格ポートと上部に 15 号のバイトン栓に適合する

ポートを持つガラス製容器である。各ポートは液体シンチレータの有機溶媒に耐性のあるテフロン樹脂の一種、パイトン栓によって各配管やビュレット等が接続されている。装置全体の気密度は、装置内外の差圧に対して 0.1-0.3%/min である。即ち、装置内を完全に真空にしたとすると、10 分後に内圧が 1-3kPa 程度に上昇する程度のリークが存在する。装置全体の容量は 3450cc で、通常の実験中の差圧は最大でも 10kPa に抑えているので、3 時間程度の測定時間に対して気体のロス は全体の 3 %以内に抑えられる。実際の運用ではほとんど大気との圧力差を作らないので、圧力依存性の測定時以外はこの誤差はほぼ無視できる。

- 振動式密度計

この装置とは別の外部装置であるが、Anton-paar 製振動式デジタル密度計 DMA-4500 を用いて LS の密度を $\pm 0.000005\text{g/cc}$ の精度で測定可能である。この装置にはサーモスタットが装備され、サンプルの温度を ± 0.3 の範囲で設定することもできる。ただし、Xe が溶け込んだ LS の密度を測定するにはシリンジを用いてサンプリングを行う必要があり、この際のロスによって正確な値を求めることはできない。なお、あらかじめ行った Xe の含まれていない Xe-LS の密度測定から、LS の体積熱膨張係数、CTE(Coefficient of thermal expansion) $\beta = 1.01 \times 10^{-3}$ が求められている。

(Table 4.1) に、Xe 溶解度測定装置に求められる精度、Xe の質量溶解度 ($< \pm 0.1 \text{ wt.}\%$) を得るために必要な各部への要求仕様と、達成値を示す。いずれの値も要求仕様を満たし、装置全体として測定精度 ($< \pm 0.1 \text{ wt.}\%$) を得られていると考えられる

Table 4.1 要求仕様と達成状況

許容値	要求性能	達成性能
密度差 ($\Delta\rho/\rho$)	$\pm 0.1\%$ (0.00077g/cc)	浮沈式 0.001g/cc 振動式 0.00005g/cc
LS 体積 ($\Delta V/V$)	0.5% (2.5ml)	$\pm 0.2^{+0.3}_{-1.0}$ ml (後者は温度変化分)
Xe 分圧	(1013 $< \pm 50$ hPa)	大気圧 2hPa、差圧 5.3kPa
LS の温度による密度変化 Xe 溶解度の温度変化	< 3 ~ 0.5	± 0.2
溶解した Xe の標準体積 ($\Delta V/V$)	$< 5\%$ (~ 100 cc)	$\sim < 100$ cc(測定毎に異なる)

4.3.2 測定手順

以下に、この Xe 溶解度測定装置による測定手順を述べる。

なお、装置は恒温水槽内にあり、常時一定温度に保たれている。

- (1) まず、装置全体を密閉し、ダイヤフラムポンプを用いて真空引きする。これはできるだけ Xe 分圧を 1 気圧に近づけて実験を行いたいためである。(Xe の分圧依存性を検証する実験の際は、この時に Xe 分圧を調整する。) 今回の実験で使用した真空ポンプの性能では、大気圧-94kPa 程度までの真空引きが可能である。残留している空気量を調べるために、このときの空気との差圧及び大気圧・気温を記録しておく。例えば、この日の大気圧が 987hPa、気温 24 、真空引き後の差圧が 91.3kPa であったとすると(仮定 1)、装置全体の容積は標準状態で 3450cc とわかっているので、残留空気の標準体積 (0) は

$$\frac{987 - 913}{1013} \times \frac{273}{297} \times 3450 = 232cc \quad (4.1)$$

と求めることができる。

- (2) 次に、差圧計が (1 気圧 - 大気圧) の値を示すまで装置内部にキセノンを導入する。このときの圧力差と質量流量計の値から装置全体の体積を求めることもできる。
(仮定 1) の条件であれば、差圧計の指示値が 2.6kPa になるまで Xe を導入する。
このときの装置内の Xe 分圧は 90.1kPa である。
- (3) ピュレットのcockを開けて液体シンチレータを導入する。Xe の溶解に伴って容器内の圧力が下がるので、差圧計の値を注視して 1 気圧前後を保つように適宜 Xe を追加供給する。また、スターラーを作動させて LS を攪拌する。同時に、ダイヤフラムポンプを作動させ、気相部の気体に成分の偏りができないよう攪拌する。気相部の気体を循環させることで、酸素濃度計の指示値を更新する役割もある。
- (4) 適切な温度の元で差圧計の値が 30 分以上変化しなくなったら、Xe の溶解が平衡に達したと判断し、このときの酸素濃度、差圧、Xe 積算流量の値を記録する。酸素濃度を記録するのは、もともと大気中で作成した LS には窒素や酸素が飽和しているため、Xe 溶解装置内でこれらの分圧が下がると脱気され、気相部に出てくるためである。これによって、最終的な気相部の Xe 分圧の低下が生じるのでこれを補正する。

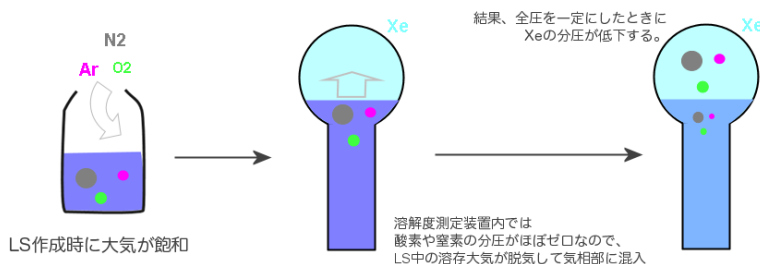


Fig. 4.6 溶存大気の放出による Xe 分圧低下

酸素濃度の値が真空引き後 0.16% だったものが 1.31% に増加し、差圧はそのまま Xe 積算流量が 1511cc であったとすると、LS の体積によって気相部が圧縮される効果及び恒温水槽によって気体が 15 度に保持されている効果を考慮すると、以下の図のような計算によって、LS500ml に溶解した Xe の標準体積は 1939cc であると求まる。LS の密度はあらかじめ振動式密度計で精密に求められている²ので、質量溶解度は Xe 分圧 97.1kPa に対して 15 度で 2.89 wt.%(1 気圧 ¹³⁶Xe 換算 3.07 wt.%) と求まる。なお、液体シンチレータ中にもともと溶けていた大気の体積比は、後述するガスクロマトグラフィーによって酸素：窒素が 1：2.2 であることがわかっているのをこれを用いた。

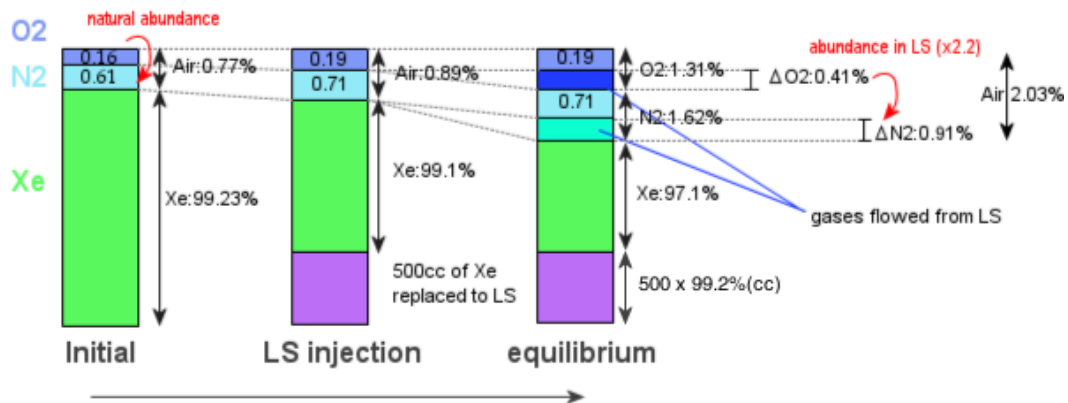


Fig. 4.7 装置内の気相部組成変化

$$V = 500\text{cc}(15^\circ\text{C}) + (3450 - 500) \times \frac{2.03}{100} \text{cc}(15^\circ\text{C} : \Delta\text{Air}) + 1511\text{cc}(20^\circ\text{C}) = 1939\text{cc}(0^\circ\text{C}) \quad (4.2)$$

- (5) 実験終了後、LS を装置から取り出し、ガスクロマトグラフを用いて Xe 溶解度の検証を行う。ただし、容器を解放することで、圧力や温度変化といったサンプリングに伴うロスが避けられないため、この値は概して質量流量計で求めた値よりも低く出ることが多い。

このような測定を様々な成分比の LS、温度、Xe 分圧について行った。

²この例だと 0.77752g/cc 15

4.4 ガスクロマトグラフによる検証

4.4.1 ガスクロマトグラフの原理

ガスクロマトグラフィー (Gas Chromatography) とは、キャリアーガスを用いて試料を分離し、分析する手法である。このための装置をガスクロマトグラフ (GC) と称する。GC には大きく分けて TCD 型と FID 型の二つの分析方法が存在する。

前者は分析対象を選ばないが感度が低く、後者は有機化合物の分析に特化しており感度が高い³という特徴を持つ。ここでは、Xe の分離・定量分析に用いられる TCD 型検出器について詳しく述べる。(Fig.4.8) に TCD ガスクロマトグラフの基本的な構造を示す。

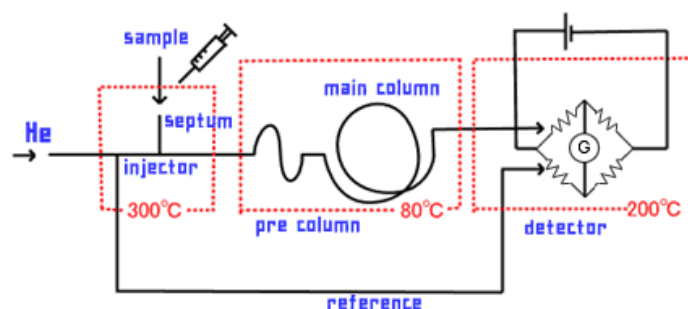


Fig. 4.8 TCD ガスクロマトグラフの構造

TCD-GC によって試料を分析する機構は以下の通りである。

まず、初期状態において GC 内部の配管内は一定流速のキャリアーガスに満たされている。キャリアーガスには通常、不活性で熱伝導度の高いヘリウムや窒素が使われる。熱伝導検出器 (Thermal Conductivity Detector, TCD) では、ブリッジ接続された 2 つの抵抗が異なる流路からのキャリアーガスによって冷却されている。一方は純粋なキャリアーガス (Reference)、もう一方はカラムを通じて分離されたキャリアーガス + 試料である。試料が無い状態では、2 つの抵抗からの熱は同じ流量のキャリアーガスによって冷却されるので温度は変わらず、抵抗値も変化しないため電流計 G に電流は流れない。

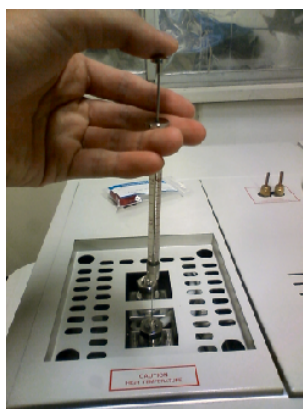


Fig. 4.9 マイクロシリンジを用いた試料の注入例

³典型的な TCD 型 GC は ppm、FID 型は ppb オーダーの感度を持つ

マイクロシリンジで採取された試料がセプタムを通じてインジェクターに入れられると、その高温のため瞬時に気化し、カラム内に充填された molecular sieves とよばれる多孔質の素材によって吸着・分離を繰り返しながらキャリアーガスによって運搬される。この際、試料成分の分子量、大きさ、極性等の特性により、カラムを通過するまでの時間（保持時間）は各成分固有の値となる。保持時間を経過した試料は順次 TCD 検出器の抵抗に到達し、キャリアーガスよりも熱伝導度が低いために、抵抗値を上げる。このとき G に流れる電流値を測定することで、試料中にどのような成分がどれだけ含まれていたかを明らかにすることができる。

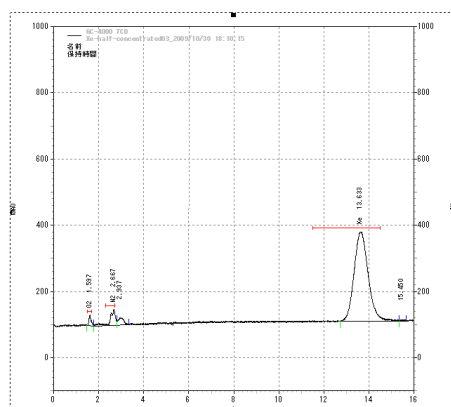


Fig. 4.10 ガスクロマトグラムの例。右のピークが Xe

なお、水素炎イオン化検出器 (Flame Ionization Detector, FID) では、電気抵抗の変わりに水素の炎を作り、炎内部に 2 つの電極を設置して両者に流れる電流を監視している。有機物が炎に混入すると、電離した炭素イオンによって電極間に電流がながれる。この電流をみることで、炭化水素を異性体のレベルで分離、検出することが可能である。

4.4.2 ガスクロマトグラフのキャリブレーション



Fig. 4.11 GC-4000

本研究では、GL サイエンス製 GC-4000 ガスクロマトグラフ及び同社製の較正ガスを用いて Xe の定量分析を行うためのキャリブレーションを実施した。これによって、既存の LS 中にどの程度の Xe

が溶解しているかを分析することができ、Xe 溶解度測定結果を担保することができる。測定には、濃度の異なる 1,000ppm から 5,890ppm までの 6 種の校正ガスを用いて、各濃度について 5 回の測定を行った。測定方法は、2.5ml のハミルトン製ガスタイトシリンジに 1ml ずつ校正ガスを含み、チャニーアダプターによって反復注入時の再現性を確保した。結果を (Fig.4.11) に示す。横軸は校正ガス 1ml に含まれる Xe の濃度 (ppm)、縦軸はガスクロマトグラム中のピークの面積である。

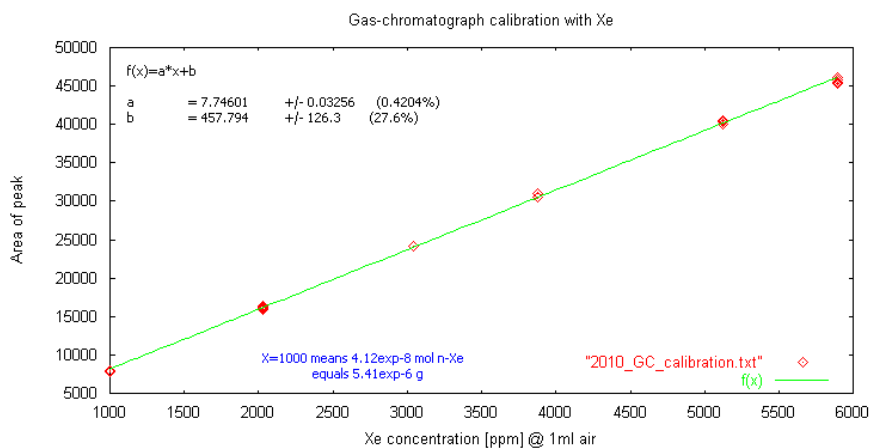


Fig. 4.12 ガスクロマトグラフの Xe による校正曲線

X 軸の誤差をシリンジの最小目盛りの半分 (1.25%)、Y 軸を測定毎のばらつきから 1σ の範囲として誤差を見積もると、実際の Xe 飽和溶解度測定の際の Xe 量に対して $\pm 2.3\%$ の精度で、即ち Xe の質量溶解度にして $3 \pm 0.07 \text{ wt.}\%$ の精度で測定が行えることがわかった。ただし、LS 中の Xe 溶解度を測定するには $1\mu\text{l}$ のマイクロシリンジを用いて LS のサンプリングを行っており、温度変化や大気への曝露といった問題もあるため、本研究ではガスクロマトグラフの有効精度は質量溶解度にして $\pm 0.1 \text{ wt.}\%$ と見積もっている。また、この影響は Xe が高濃度であるほど顕著であるので、高圧下や低温下などのよりサンプリングロスが見込まれる測定では誤差をより大きく見積もる必要がある。

4.5 Xe 飽和溶解度の成分依存性

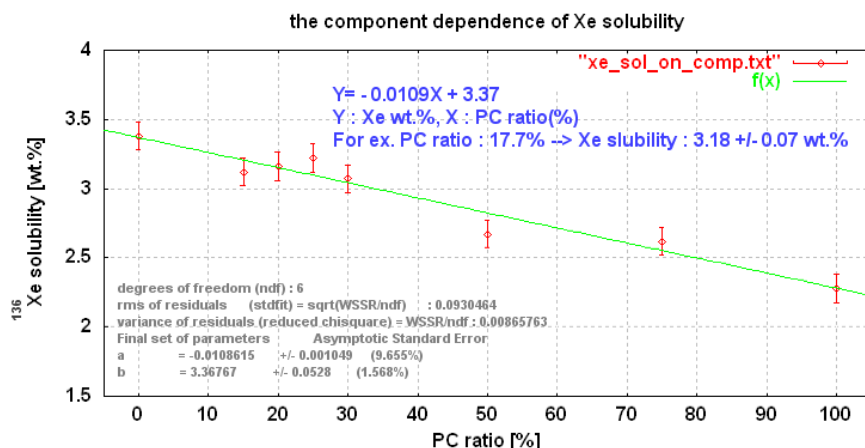


Fig. 4.13 Xe 飽和溶解度の LS 成分依存性

液体シンチレータに対する Xe の飽和溶解度の成分依存性について検証した結果を示す。測定条件は液温 $15.0 \pm 0.3^\circ\text{C}$ 、Xe 分圧 90kPa 以上とし、LS に占める PC の割合を 0 から 100%まで変化させて各混合比での溶解度を計測した。即ち (Fig.4.13) 中、左端が N-10 のみ、右端が PC のみから成る液体シンチレータである。結果は、ヘンリーの法則⁴を仮定して Xe 分圧 1 気圧下での値に補正した。X 軸の誤差はビュレットの精度によって 0.1%、Y 軸の誤差は主に酸素濃度計の測定精度によって 0.1 wt.%である。なお、Y 軸の値は ^{136}Xe での質量溶解度に換算して示した。

グラフの示すとおり、実際の KamLAND での運用温度である 15 においては PC の比率が概ね 30%未満であれば、溶解度 3.0 wt.%を達成できることが明らかになった。この結果により、当初考えられていた溶解度 2.5 wt.%の場合と比べ、ミニバルーンの直径を約 6%小さくすることができ、バルーン素材や LS の体積に起因するバックグラウンドの低減が可能となった。なお、以後の圧力や温度による溶解度の測定では PC の比率が 17.7%の LS を基準として測定を行った。(Fig.4.13) の結果から得られるこの時の溶解度は ^{136}Xe 換算 3.18 wt.%である。以後の実験の信頼性の検証のために、ここに各実験から導かれた 1 気圧、15、PC 比率 17.7%の時の ^{136}Xe 換算質量溶解度を予め示す。いずれも誤差の範囲で正確な再現性を持ち、装置の設計・運用に問題が無いことを示すものである。

Table 4.2 各溶解度測定実験における基準点の値

成分依存性測定実験	$3.18 \pm 0.1 \text{ wt.}\%$
温度依存性測定実験	$3.23 \pm 0.1 \text{ wt.}\%$
圧力依存性測定実験	$3.17 \pm 0.1 \text{ wt.}\%$

また、PC 比率が 100%の時の Xe 溶解度は、BOREXINO 実験での測定やバブリング法によって測定した値よりも僅かに高くなっている。このことから、やはりバブリング法では気相部の Xe 分圧の問題やバブリングによる LS の気化などの効果を十分には補正できていないことがわかる。

⁴気体の溶解度が気相部の分圧に比例するという法則。4.7 節において検証

4.6 Xe 飽和溶解度の温度依存性

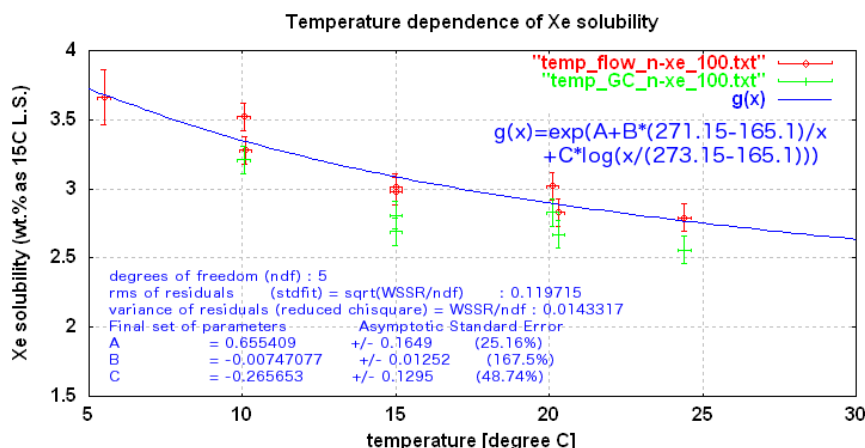


Fig. 4.14 Xe 飽和溶解度の温度依存性

液体シンチレータに対する Xe の飽和溶解度の温度依存性について検証した結果を示す。y 軸は濃縮されていない天然のキセノン (n-Xe) 換算での溶解度、x 軸は温度を表す。一般に、気体の溶解度は以下の式に従うことが知られている。

$$\log y = A + \frac{B}{x/(273.15 - T)} + C \log \frac{x}{(273.15 - T)} \quad (4.3)$$

ここで、y が溶解度、x が温度、A,B,C は任意係数、T は気体の沸点 K である。結果を以下の式にフィッティングしたものを (Fig.4.14) に示す。

なお、キセノンの沸点は 165.1K である。

$$y = \exp \left(A + B \times \frac{(273.15 - 165.1)}{x} + C \log \frac{x}{(273.15 - 165.1)} \right) \quad (4.4)$$

図中、フィッティングに用いた赤の点が Xe 溶解度測定装置による計測値、緑の値がガスクロマトグラフによって追測定された値である。サンプリングロスによって若干低めの値が出ているが、概ね結果を追認していることがわかる。

KamLAND 実験では、液体シンチレータはバッファオイルなどを通じて、坑内の地下水から作られた超純水によって常に 15 以下に冷却されている。しかし、Xe を LS に溶解させる装置は冷却機能を持たないため、最高で 20 での運転が想定されている。今回測定した値を ^{136}Xe に換算し、フィッティングによって得られた係数と (4.4) 式を用いて 20 での値を求めると 3.00wt.% となり、要求を満たすことが明らかとなった。

4.7 Xe 飽和溶解度の分圧依存性

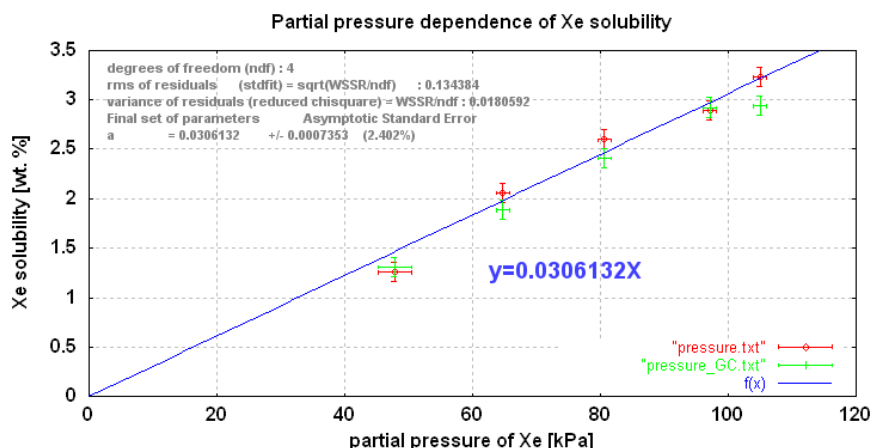


Fig. 4.15 Xe 飽和溶解度の分圧依存性

(Fig.4.15) に、Xe 溶解度の Xe 分圧依存性を示す。y 軸が n-Xe の 15 ± 0.2 における溶解度、x 軸が Xe の分圧 (kPa) を表す。Xe 分圧の調整は、4.3.2 節手順 (1) において溶解度測定装置内を真空引きする際に空気はある程度残し、そこに Xe を導入することで行った。無論、その後の計算過程において 500cc 分の LS 体積が Xe に置き換わったと考えられる部分も Xe の分圧に応じて補正を加えた。赤が溶解度測定装置による測定値、緑が GC による追検証である。なお、低圧部分でエラーバーが大きくなっているのは、酸素濃度計の測定精度が高濃度側で $\pm 0.1\%$ から $\pm 0.5\%$ になっていることに起因する。

液体に対する気体の溶解度は、以下に示すヘンリーの法則に従うことが知られている。ここでの p は気体の分圧 (kPa)、 H_d はヘンリー定数、 C_a は液相内濃度 (mol/m^3) である。

$$p = H_d C_a \quad (4.5)$$

(Fig.4.15) の結果はこの法則が Xe と LS においても成立していることを示す。この結果によって、これ以前の測定において Xe 分圧が一気圧 (101.3kPa) でないことをヘンリーの法則によって補正した正当性が示された。

また、Xe 溶解度が圧力に比例することが明らかになったことで、将来的にミニバルーンをより水深が深い場所に設置し、圧力を加えることで大量の崩壊核を観測する Super-KamLAND-Zen 実験実現の可能性も示したことになる。

第5章 Xe含有液体シンチレーターの密度変化

5.1 概要

本章では、最終的に KamLAND-Zen 実験に用いられる Xe-LS 開発の結論とも言える Xe-LS の成分組成 (レシピ) について述べる。前章で述べたように、KamLAND-Zen 実験にむけて、温度 15℃、PC の比率 20%前後という条件で ^{136}Xe の質量溶解度は 3.0 wt.% が実現可能であることが示された。

3.2.1 節で述べたように、KamLAND-Zen 実験 1st Phase では、既存の液体シンチレータを内包するバルーン内に、キセノン 400kg を含む直径約 3.2m のミニバルーンを導入する計画である。バルーンの素材はナイロンまたは EVOH が予定されており、厚さは 15~25 μm とされている。バルーンフィルムに含まれる放射性不純物の量を極力抑えるため、またそれらの崩壊によって放出される γ 線のタグのためにも、バルーンフィルムをこれ以上厚くすることはできない。バルーンフィルムの引張強度については別途研究がなされており、ナイロン、EVOH のいずれの場合も破断限界は 1kgf/cm 程度と見積もられている。ここで、ミニバルーンの内外の液体シンチレータに密度差が生じると、ミニバルーンには強い張力が働くことになる。バルーンの半径 R を 1.6m、張力を T 、バルーンの内圧を P 、チムニー部からバルーン底部までの水深 h を 13m¹ とし、安全係数を 10 倍にとると、バルーンを十分大きな球形と仮定してヤング・ラプラスの式より

$$T_{max} = \frac{R \times P}{2} \quad (5.1)$$

がいえるので

$$P_{max} = (\Delta\rho)gh < 0.00125\text{kgf}/\text{cm}^2 \quad (5.2)$$

となり、許容される密度差は

$$\Delta\rho/\rho = 9.6 \times 10^{-4} \approx 0.1\% \quad (5.3)$$

と求まる。

則ち、安全に KamLAND-Zen 実験を行うためには液体シンチレータの内外の密度差を 0.1%以内に抑えなくてはならない。KamLAND では既に、現在インストールされているバルーン内の液体シンチレータと外部のバッファオイルとの密度差を 0.044%に抑えている実績があり、これは十分実現可能な水準であると考えられた。

¹P21 第3章 2.1 節 (Fig. 3.6) を参照されたい

ここで、Xeの溶解度を 3.0 wt.%、発光剤である PPO の配合量を 2.7g/l として、外部の液体シンチレータより 0.1%以内の密度差で僅かに重い Xe-LS の組成を考えてみる。LS を構成する有機溶媒の密度は以下の通りである。この PPO の配合量については 5.3.2 節で詳しく述べる。

Table 5.1 LS の成分と密度

成分	密度 (15 基準)
Decane(N-10)	0.73392 g/cc
Pseudocumene(PC)	0.87970 g/cc

したがって目標とする LS の密度を $\rho = 0.77721 \text{ g/cc}$ とすると、開発すべき Xe-LS の組成比は PC=12.3%、N-10=87.7%となる。ここで 2 つの問題が生じる。

まず一つは、PC の割合が少なすぎることである。PC はそのベンゼン環内の 電子の作用によって、LS 内でシンチレーション光の元となるエネルギーを N-10 から発光剤の PPO に受け渡す役割を果たしていると考えられる。PC の割合が 20%前後でないと、入射エネルギーに対して十分な発光量を維持できない。

2 つ目の問題は、前章に述べた Xe 溶解度測定実験において、計測された Xe 溶解度から推定される密度と、測定装置内に設けた密度計が示す値の間に多大な差異が認められたことである。一例を挙げると、流量計から求められた Xe の溶解度が 2.6 wt.%であったのに対し、密度計から求められた値は $1.7 \pm 0.13 \text{ wt.}\%$ 前後となるなどである。密度計の値に誤差が大きいのは、Xe 溶解度測定装置内の浮沈式密度計は有効精度が足りず、また外部の振動式密度計は十分な精度をもっているものの、LS のサンプリングの際にロスが大きく、浮沈式と一致した値を出さないなどの理由によるものである。

Xe 溶解度については GC による追検証が行われているので、この密度の推定値と実測値の不一致という現象の原因として、Xe の溶解に伴って LS の体積が膨張しているという疑いが生じた。これは部分モル体積という概念で、たとえば水とエタノールを 50ml ずつ混合すると、合計体積は 100ml ではなく 96ml となってしまうことが広く知られている。このときの混合物にしめる水とエタノールの 1mol あたりの体積は混合前よりも小さくなっているのである。LS に対する Xe の溶解、あるいは PPO の溶解では、この部分モル体積が混合前よりも大きくなっていることが予想された。従って、LS に対する Xe の溶解、PPO の溶解、またそれらの溶媒となる PC と N-10 の混合においてもこれら混合に伴う密度の変化が生じるかどうかを検証し、その程度を計測した。

本章は次節以下に述べる密度特性の測定結果から、溶媒と溶質の混合に伴う密度変化特性を明らかにし、最終的な Xe-LS のレシピ決定および密度の精密調整が可能となったことを示すものである。

5.2 プソイドクメンとデカンの混合

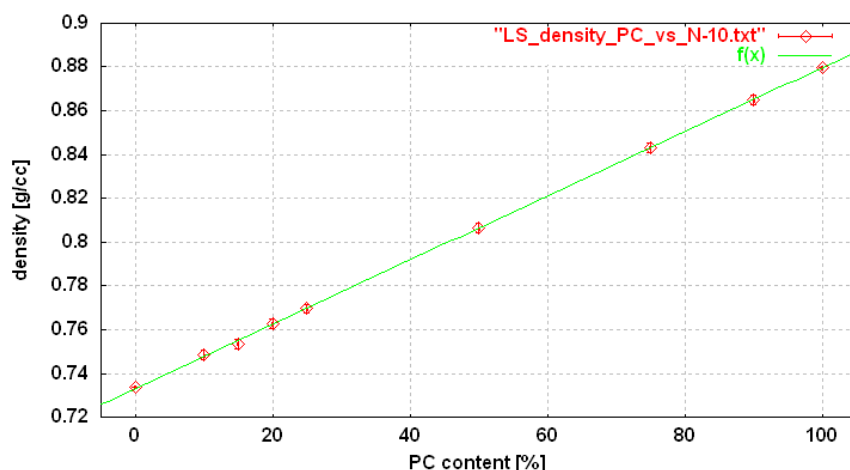


Fig. 5.1 PC と N-10 の混合に伴う密度変化

(Fig 5.1) に示すのは PC と N-10 の混合に伴う密度変化である。x 軸が LS に占める PC の割合、y 軸が密度である。測定は誤差 0.1ml 以内のビュレットを用いて混合液の和が合計 100ml になるように調合し、振動式密度計 DMA-4500²を用いて密度を測定した。グラフ中の緑の直線は PC と N-10 の密度を単純に比率に応じて加算したもので、測定された値はいずれも誤差の範囲でこの直線と一致した。したがって、PC と N-10 の混合においては、混合後の液体の部分モル体積は混合前と変わらず、密度は単純な加算計算によって行えることが明らかとなった。

5.3 液体シンチレータへの PPO の混合

5.3.1 PPO 混合による密度変化

PPO を溶解させたときの LS の密度変化について測定を行った。手順は以下の通りである。

- (1) 3 つのバイアルにそれぞれ 100 ± 0.1 ml の LS³をいれる。
- (2) 電子天秤 (測定誤差 0.0001g) を用いて PPO を量り取り、それぞれの LS に溶かす。
- (3) 量り取った PPO の量が正しいかどうかを FID ガスクロマトグラフを用いて確認する。この FID-GC は既に 0.01g/l の精度で LS 中の PPO の量を計測できるように較正されているものである。
- (4) 振動式密度計 DMA-4500 を用いて LS の密度を測定する。

結果を Table 5.2 に示す。

²誤差 0.000005g/cc を誇る密度計。P34 参照

³このときの LS の成分は PC : 18.7%であった。

Table 5.2 PPO の溶解量と密度の関係

密度 [g/cc] PPO なし	PPO [g/l] 電子天秤調べ	PPO [g/l] FID ガスクロ調べ	密度 [g/cc] PPO あり	実効密度増加率
0.76114	0.1000	1.01	0.76151	37.0±0.5%
0.76114	0.2004	2.04	0.76186	35.9±0.6%
0.76114	0.2707	2.67	0.76211	35.8±0.5%

この結果を見ると、電子天秤で計測した PPO の量と FID で計測した量に大きな違いは見られない。しかし、LS の密度は明らかに加えた PPO の質量ほどの増加が認められない。(Fig.5.2)

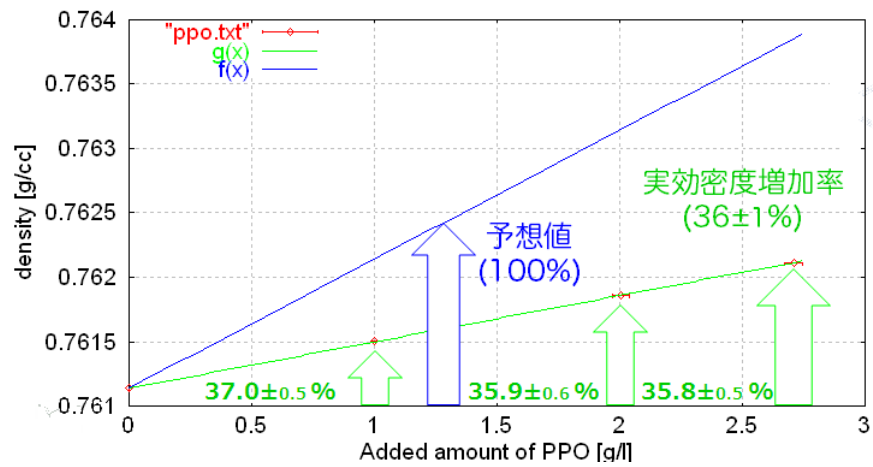


Fig. 5.2 PPO の溶解に伴う密度変化

したがって、PPO の溶解に伴って LS の体積が僅かに膨張し、密度変化を少なくしているものと考えられる。ここでは、加えた PPO の質量のうちどの程度が実際の密度変化に寄与するかを考え、実効増加率を $\frac{\text{実際に増えた密度 (g/cc)}}{\text{単位体積の LS に加えた PPO の質量 (g/cc)}}$ と定義した。測定の結果、PPO 濃度は 2.7g/l までの範囲で安定して $36 \pm 1\%$ であることがわかった。

5.3.2 PPO 濃度と発光量の関係

既存の KamLAND で用いられている液体シンチレータの PPO 濃度は 1.36g/l である。対して、KamLAND-Zen 実験で計画されている Xe-LS の PPO 濃度は 2.7g/l とされている。

これは、Xe の溶解に伴って Xe-LS の発光量が低下することが判明しているため、発光剤である PPO の濃度を上げて補うためである。以下に、平行して行われた研究³²⁾によって明らかになった Xe 量と発光量の関係、および発光量と PPO 量の相関を示す。この研究によって、Xe の溶解によって減少した発光量 15% を補うために、PPO の量を 2.7g/l とすることが決定された。

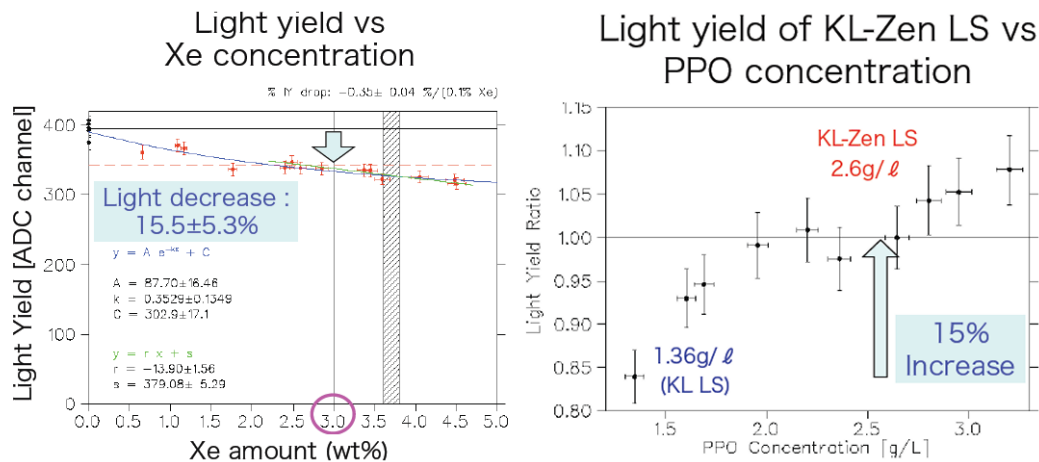


Fig. 5.3 Xe 溶解に伴う発光量変化 (左) PPO と発光量の関係 (右)

5.4 液体シンチレータへのキセノンの溶解

5.4.1 概要

液体シンチレータへの Xe の溶解に伴う密度変化では、振動式密度計 DMA-4500 を用いた計測では正確な測定ができない。これは、Xe を分圧 1 気圧、温度 15 °C 飽和させた LS を密閉された溶解装置から取り出すと、直ちに脱気を起こし、Xe 溶解度が下がってしまうためである。このサンプリングロスなしで Xe-LS の密度を正確に求めるために、Xe の溶解に伴う LS の体積膨張を $\Delta\rho/\rho < 0.014\%$ で測定できる装置を設計した。この 0.014% という精度は、ミニバルーンの要求する密度差よりも厳しい。これは、実際の KamLAND-Zen での Xe-LS 作成時に配管内に設置された密度計の値から Xe の溶解度を求めるために必要な精度 (0.03%) を考慮したものである。この精度で密度の Xe 溶解度との関係を求めることで、LS 中の Xe 量は GC と密度計の 2 つの装置を用いて相互検証することが可能になる。

5.4.2 実験装置

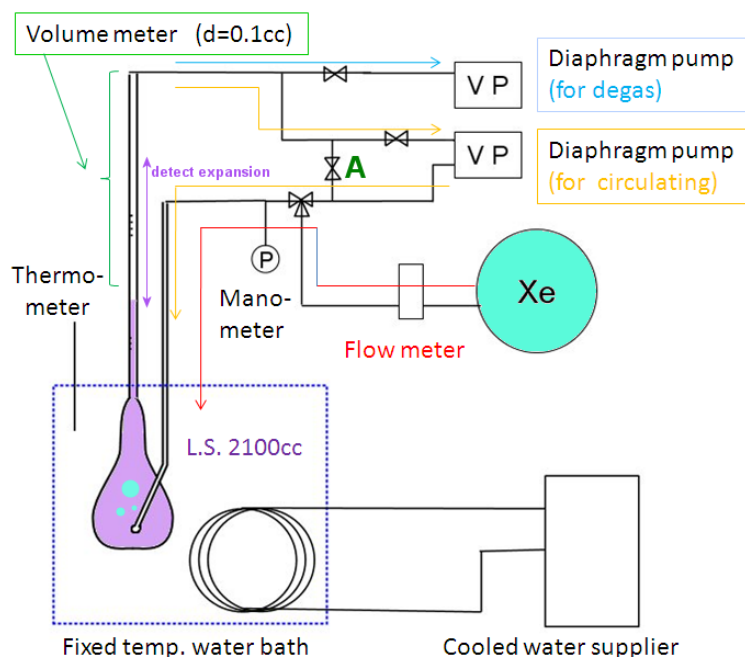


Fig. 5.4 Xe 溶解に伴う LS の体積膨張測定装置

(Fig.5.4) に示したのが Xe 溶解に伴う LS の体積膨張測定装置である。流量計や恒温水槽などの装置は、前章の Xe 溶解度測定装置と同じものを用いている。図中左のひょうたんのようなガラス容器が体積膨張測定装置で、2100cc の LS を入れられるようになっている。このとき、LS の液面が接しているのが、ガラス容器上部につけられた体積計の目盛りの下端であり、その後の Xe の溶解に伴って LS の体積が膨張すると、液面が上昇してその体積が測定できる。なお、Xe 導入のための側管の体積は体積計の 6% であるとわかっている。この装置の性能を以下に示す。

Table 5.3 体積膨張測定装置の性能

温度誤差	±0.1
LS の体積誤差	±0.25 %
Xe 分圧誤差	±1 %
溶けた Xe 量の誤差	< ±5 %
体積膨張率測定精度	< ±0.014%
装置の全容積	2897cc

5.4.3 測定手順

測定手順は以下の通りである。

- (1) まず、LS 約 2100cc を体積計上部からガラス容器内に注入する。容器は 15℃ に保たれているので、LS が温度順応するのをまつ。温度順応に伴って体積が変化するので、最終的に 15℃ で 2100cc の目盛りに合うように LS の量を調整する。このとき、側管と体積計の液面が一致するように、バルブ A は開いておく。
- (2) 容器を密閉し、真空ポンプ (図中水色) を用いて真空引きを行う。この処理によって、液体シンチレータ中の溶存大気を追い出すことができる。この操作は LS の発泡が終わるまでつづける。脱気処理後の液位を確認⁴し、このときの内圧を記録する。
- (3) バルブ A を閉めて、側管から Xe を容器内に導入する。体積計の上部には十分な空間があり、Xe の導入時に生じる泡などが配管内に入らないように考慮されている。LS に解けた Xe の量が十分でないのに配管内の圧力が上昇した場合、ダイヤフラムポンプ (図中黄色) を用いて配管内の Xe を LS に循環させ、溶解を促す。
- (4) 必要な量の Xe が導入できたら、バルブ A を開けて液位をあわせ、体積計の数値を読む。



Fig. 5.5 体積膨張測定装置のガラス容器

⁴真空下では、LS の体積が 0.05% ほど膨張することがこの装置の試験運転で明らかになっているので、その影響を考えて体積を確認する。

5.4.4 実験結果

前節で述べたような方法を用いて、2度の測定を行った。(Fig.5.6) 及び (Fig.5.6) 中、緑で示したものがPC=17.7%、PPO=2.7 g/l、 $\rho=0.76051$ g/cc のLS 2112.0 \pm 0.5cc に対する測定、赤で示したものはPC=20.4% PPO=2.7 g/l $\rho=0.76452$ g/cc のLS 2112.6 \pm 0.5cc に対する測定で、温度は前者が 14.7 \pm 0.1、後者が 15.3 \pm 0.1 である。

まず、(Fig.5.6) に Xe の溶解に伴う体積の膨張 ΔV を示す。グラフから明らかなように、Xe の溶解度に比例してほぼ一定割合の体積膨張が認められる。

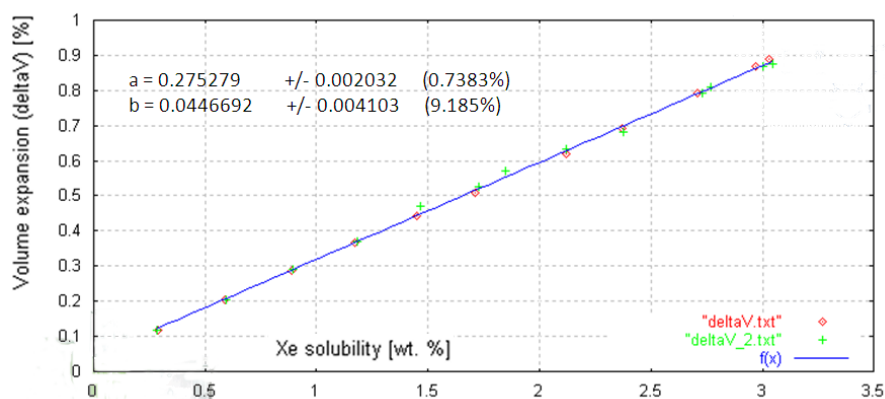


Fig. 5.6 Xe の溶解に伴う LS の体積膨張

(Fig.5.7) は、(Fig.5.6) の結果を Xe 溶解度で割ったもの、即ち (Fig.5.5) のグラフの傾きに相当する量をプロットしたものである。Xe 溶解度が低い領域では、ガラス容器内の全圧が低いため、真空引きによる LS の体積膨張の影響によって体積膨張率が大きくなる傾向が認められる。そのため、容器内の全圧が 1 気圧に近く、Xe 溶解度が高い領域の結果を反映するため、単位 Xe 量あたりの LS の体積膨張率の収束値をもとめた。(Fig.5.7) より、どちらの測定結果も 0.28% へと収束していると認められる。なお、ここでの体積膨張率とは、Xe の 1 wt.%あたりの LS の $\Delta V/V(\%)$ と定義する。前節で用いた密度の実効増加率で表現すると、Xe を 1 wt.%に相当する質量を溶かしても、LS の密度は $(1 - 0.28) = 0.72\%$ しか増えないということもできる。

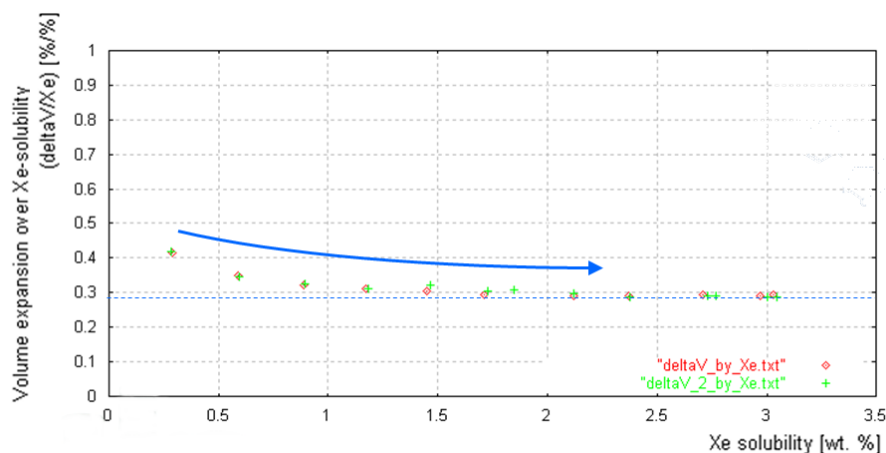


Fig. 5.7 単位 Xe 量あたりの LS の体積膨張

5.4.5 考察

以上の結果から、KamLAND-Zen 実験で用いられる Xe-LS 開発に必要な数値がすべて求まった。則ち、Xe の溶解に伴う LS の密度変化、PPO の溶解に伴う LS の密度変化、そして前章で決まった Xe の溶解度である。これらの数値から、目標とする $\rho = 0.77721\text{g/cc}$ の Xe-LS を作成するためのレシピを以下にまとめる。目標密度は暫定的なものなので、求められたパラメータを用いて適宜必要な密度の Xe-LS を調合することができるほか、実際のインストール作業時には、バルーンにかかる負荷を実際に測定しながら、適宜密度の調整を行いつつ LS を導入する予定である。

Table 5.4 Xe-LS のレシピ

項目	値	単位
PPO 濃度	2.7	g/l
V/Xe	0.28	%
n-Xe 原子量	131.29	g/mol
^{136}Xe 原子量	135.91	g/mol
N-10 密度	0.73392	g/cc
PC 密度	0.8797	g/cc
目標 ^{136}Xe 溶解度	3.00	wt. %
n-Xe 溶解度換算	2.9	wt. %
PC content	17.69	%
N-10 content	82.31	%
目標密度	0.77721	g/cc
w/z PPO w/o Xe	0.760684815	g/cc
w/o PPO nor Xe	0.759712815	g/cc

第6章 結論

本論文によって示された結論を以下に挙げる。まず、今回作成した Xe 溶解度測定装置によって、液体シンチレータへの Xe 溶解度の成分依存性、温度依存性、分圧依存性が 0.1 wt.% の精度で明らかになった。これによって KamLAND-Zen 実験で用いられるキセノン含有液体シンチレータの ^{136}Xe 質量溶解度は 3 wt.% とすることが可能であることが明らかになった。

また、ミニバルーン的设计上の制約からくるバルーン内外の LS の密度差 $\Delta\rho/\rho < 0.1\%$ の要求を満たすために Xe や PPO の溶解に伴う LS の密度変化特性を研究し、任意の密度を持つ Xe-LS を作成するために必要な PC と N-10 の配合比を明らかにした。付随する成果として、LS の密度から Xe の溶解度を逆算するのに十分な精度の溶解度と密度の関係式を得ることができた。

したがって本論文によって、KamLAND-Zen 実験のためのキセノン含有液体シンチレータの開発が完了したと結論できる。

今後の課題として、実際に KamLAND-Zen 実験で使われる蒸留済みの液体シンチレータに Xe を溶かした際の光透過長測定や、将来の KamLAND-Zen 実験 Phase2 のための発光量の向上、加圧による Xe 溶解度の向上に関する研究などが望まれる。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、指導教官である井上先生には実験データの評価や論文の執筆方針などについてご指導いただき大変お世話になりました。

直接の指導をしていただいた岸本先生には、装置のデザインや結果の解析のみならず、科学的なものの考え方や実験の心構えなど、修士課程2年間で学んだほとんどのことを教えていただきました。

白井先生、三井先生、古賀先生、中村先生、吉田先生にはハードウェアミーティングでの実験内容の評価や解釈について大変有益なアドバイスをいただきました。

実験装置の製作や実験器具の使い方、廃液の処理や化学物質の扱い等に関しては技官の高山さん、中嶋さん、花田さん、根本さんに大変お世話になりました。

実験装置の中核となる特注のガラス容器の製作に関して、東北大学理学研究科・理学部硝子機器開発・研修室のみなさんには複雑な実験装置を無茶な納期でお願いし、また修理等でも大変お世話になりました。深く感謝いたします。

玉江先生、丸藤先生、清水先生、池田先生にもコンピュータの扱いや各種データの提供等でお世話になりました。

上島先生には光透過長測定実験に必要な KamLAND 液シンをお忙しい中サンプリングし、仙台まで送っていただきました。

また、ニュートリノ科学研究センター事務の三浦さん、遠藤さん、大塚さん、佐々木さんには大学院生生活を送る上での各種手続き等でお世話になりました。

学部生時代にセミナーを担当していただいた山口先生にも実験中に何度か相談に乗っていただき、また修論作成に当たってもご指導いただきました。

また、ガスクロのセットアップや関連する研究で Emile 君、加藤君をはじめ、研究室の学生諸氏にも感謝しています。

最後に、卒業までの長い期間支えてくれた家族、友人に感謝いたします。

参考文献

- 1) F.Reines, C.L. Cowan, Jr.,Nature 178,446-449 (1956)
- 2) PDG 2010
- 3) Y. Ashine et al. (Super Kamiokande collaboration),Phys. Rev D 71(2005)112005
- 4) SNO collaboration, Phys. Rev. Lett. 89 (2002) 011301
- 5) S.Abe et al.(The KamLAND collaboration),Phys. Rev.Lett.100(2008)221803
- 6) 安田修 ニュートリノ振動の現象論 日本物理学会誌 Vol.58 No.5 2003
- 7) Sergio Pastor "precision cosmology and neutrinos" Nuclear Physics B (Proc.Suppl.) 168(2007)17-22
- 8) R.Bernabei et. al. "Investigation of $\beta\beta$ decay modes in ^{134}Xe and ^{136}Xe " Physics letter B 546 (2002)
- 9) S. M. Bilenky "Neutrinoless Double Beta-Decay" Physics of Particles and Nuclei, 2010, Vol. 41, No. 5, pp. 690-715.
- 10) Ettore Fiorini "NEUTRINOLESS DOUBLE BETA DECAY" Nuclear Physics B (proc. Suppl.) 168(2007) 11-16
- 11) H. V. Klapdor-Kleingrothaus et al."THE EVIDENCE FOR THE OBSERVATION OF $0\nu\beta\beta$ DECAY:THE IDENTIFICATION OF $0\nu\beta\beta$ EVENTS FROM THE FULL SPECTRA " Physics Letters A Vol. 21, No. 20 (2006) 1547-1566
- 12) Majorana experiment homepage <http://majorana.npl.washington.edu/>
- 13) Markus Ball "NEXT: A Neutrinoless Double Beta Decay Experiment" IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record 2009
- 14) L. Simard The NEMO-3 experiment and the SuperNEMO project Progress in Particle and Nuclear PhysicsVolume 64, Issue 2, April 2010, Pages 270-272
- 15) 岸本忠史 二重ベータ崩壊と CANDLES 実験 高エネルギーニューズ 第24巻3号 2005
- 16) 石原信弘 二重ベータ崩壊実験 DCBA の現状と将来 高エネルギーニューズ 研究紹介 Vol26No2-2007.7.8.9
- 17) S. Abe et al. Precision Measurement of Neutrino Oscillation Parameters with KamLAND arXiv:0801.4589v3 [hep-ex] 25 Jun 2008
- 18) T. Araki et al. Experimental investigation of geologically produced antineutrinos with KamLAND Vol 436—28 July 2005—doi:10.1038/nature03980

- 19) S.Abe, et al. Production of radioactive isotopes through cosmic muon spallation in KamLAND
PHYSICAL REVIEW C 81, 025807 (2010)
- 20) 渡辺寛子 KamLAND-Zen ~シミュレーションによるバックグラウンドと検出感度の評価~ 二重ベータ崩壊研究懇談会 2010
- 21) 竹本康浩 東北大学理学研究科 修士論文 2009
- 22) 永井成亮 東北大学理学研究科 修士論文 2010
- 23) 大野洋平 デッドタイムフリーデータ収集回路 MoGURA による ^{10}C タギング 二重ベータ崩壊研究懇談会 2010
- 24) 寺島亜寿紗 東北大学理学研究科 修士論文 2009
- 25) IUPAC Solubility Data Series, Vol. 2
- 26) B. Caccianigaa and M. G. Giammarchi Neutrinoless double beta decay with Xe-136 in BOREXINO and the BOREXINO Counting Test Facility Astroparticle Phys.14 (2000)15
- 27) 本浄高治 基礎分析化学 化学同人 1998
- 28) 海老原高士 東北大学理学研究科 修士論文 2007
- 29) ウシオ電機株式会社 光技術情報誌「ライトエッジ」No.7 1996
- 30) 岸本康宏 personal communication 2010
- 31) S. Noel and H. Mes SNO-STR-91-062 1991
- 32) CHATWIN-DAVIS A Emile KamLAND weekly hardware meeting 2010

付 図

1.1	ベータ崩壊における電子のエネルギー分布	1
1.2	これまでに明らかになったニュートリノ振動のパラメータ	5
2.1	ニュートリノの質量構造	6
2.2	最も軽いニュートリノと有効質量の関係 (PDG 2010)	7
2.3	$2\nu\beta\beta$ および $0\nu\beta\beta$ のファインマンダイアグラム	8
2.4	各種 崩壊のエネルギースペクトル・ ^{82}Se の例	9
2.5	mass parabola	11
2.6	Xe の崩壊図 LBLN ToRI (1999)	11
2.7	計画中の主な二重ベータ崩壊探索実験の目標感度	16
3.1	原子炉からのニュートリノ振動 (左)、ジオ・ニュートリノの検出 (右)	17
3.2	KamLAND の構造	18
3.3	KamLAND で用いられている光電子増倍管	18
3.4	KamLAND の液体シンチレータの成分	19
3.5	KamLAND における反電子ニュートリノの検出原理	20
3.6	KamLAND-Zen 実験	22
3.7	種々の核行列要素	24
3.8	予測されるエネルギースペクトル	25
3.9	^{214}Bi Tagging	26
3.10	^{10}C 原子核破碎	26
3.11	デッドタイムフリーデータ収集回路 MoGURA	27
4.1	バブリング法による Xe の溶解	30
4.2	文献値とバブリング法による実測値の比較	30
4.3	Xe 溶解度測定装置	31
4.4	熱式質量流量計の原理	32
4.5	装置の温度安定性	33
4.6	溶存大気の放出による Xe 分圧低下	35
4.7	装置内の気相部組成変化	36
4.8	TCD ガスクロマトグラフの構造	37
4.9	マイクロシリンジを用いた試料の注入例	37
4.10	ガスクロマトグラムの例。右のピークが Xe	38

4.11 GC-4000	38
4.12 ガスクロマトグラフの Xe による較正曲線	39
4.13 Xe 飽和溶解度の LS 成分依存性	40
4.14 Xe 飽和溶解度の温度依存性	41
4.15 Xe 飽和溶解度の分圧依存性	42
5.1 PC と N-10 の混合に伴う密度変化	45
5.2 PPO の溶解に伴う密度変化	46
5.3 Xe 溶解に伴う発光量変化 (左)、PPO と発光量の関係 (右)	47
5.4 Xe 溶解に伴う LS の体積膨張測定装置	48
5.5 体積膨張測定装置のガラス容器	49
5.6 Xe の溶解に伴う LS の体積膨張	50
5.7 単位 Xe 量あたりの LS の体積膨張	50
A.1 シンチレーション光のスペクトル	1
A.2 透過長測定装置	2
A.3 透過長測定装置 写真	4
A.4 光源の短期時間安定性	5
A.5 光源の長期時間安定性	5
A.6 水、及び超純水の透過長測定結果	6
A.7 アクリル窓なしの空気の透過長	7
A.8 ビーム直径によるドライ・ラン透過長の変化	8
A.9 測定に用いた光学系のドライラン結果	8
A.10 カムランド液シンの透過長測定結果	9

付表

1.1	ニュートリノの混合角と質量二乗差 (PDG 2010)	4
2.1	主な $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験	15
3.1	LS 組成・物性表	19
3.2	液体シンチレータ中の放射性不純物	21
3.3	LS 原子組成	21
3.4	$Q > 2\text{MeV}$ の二重崩壊核の比較	23
3.5	予測される一年あたりのイベント数	25
3.6	ミニバルーン中の放射性元素 (仮定値)	25
3.7	FADC 仕様	28
4.1	要求仕様と達成状況	34
4.2	各溶解度測定実験における基準点の値	40
5.1	LS の成分と密度	44
5.2	PPO の溶解量と密度の関係	46
5.3	体積膨張測定装置の性能	48
5.4	Xe-LS のレシピ	51
A.1	測定を行った Step 数とトラック長の関係	4
A.2	SNO における水の透過長測定結果	6
A.3	水の透過長測定結果	6
A.4	ビーム直径とドライラン透過長の関係	8

付録A キセノン含有液体シンチレータの光透過長測定

A.1 概要

この章では、液体シンチレータへのキセノンの溶解がその光透過率に与える影響を考察している。KamLAND-Zen 実験では既存のバルーン内に直径 3.16m のミニバルーンを設置し、キセノンを含んだ液体シンチレータを導入する。このミニバルーン内で発生したシンチレーション光は Xe-L.S.、ミニバルーン、KL-L.S.、既存のバルーン、バッファオイル、アクリル層を経て光電子増倍管へと到達するため、各部の光透過率が1 イベント当たりの光量、則ちエネルギー分解能に直接影響を及ぼす。

本研究は実際の KamLAND-Zen 実験とほぼ同等のスケールをもつ、実機サイズでの光透過長測定装置を製作し、キセノンの有無によって液体シンチレータの光透過長に有意な変化が無いことを確認するための装置をセットアップし、性能を評価したものである。

A.2 序論

現在の KamLAND で用いられている液体シンチレータの光透過度 (1)、シンチレーション光のスペクトル (2)、PMT の量子効率 (3) を掛け合わせたもの (4) を (Fig.A.1)²⁸⁾ に示す。この結果より、380nm から 450nm 程度までの波長の光透過率を考えることが重要であることがわかる。

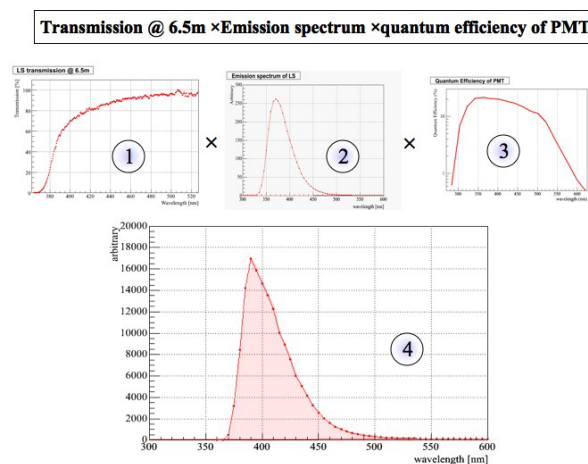


Fig. A.1 シンチレーション光のスペクトル

先に行われた研究²⁴⁾によって、キセノンを溶かした新液体シンチレータの光透過率は、既存のものとの9cm当たりの透過率として0.15%の誤差の範囲内にあることが明らかであるが、これはミニバルーンの直径3.16mに換算すると5%程度の不定性を生じることになる。

本研究では、キセノンアークランプを用いた光源からの光を液体シンチレータを入れた容器に導き、実際のミニバルーンに近い2.5m 当りの光透過率を測定することによって誤差の低減と、透過長の絶対値の測定をしようとするものである。

ここで透過長 (Attenuation length) とは、入射された光の強度が $1/e$ となる距離として定義される。即ち l を透過長として、ある距離 x だけ媒質中を透過した光の強度 $I(x)$ は、初期値を I_0 としてランベルト・ベールの法則により次のように書ける。

$$I(x) = I_0 e^{-\frac{x}{l}} \quad (\text{A.1})$$

現在の KamLAND で用いられている液体シンチレータでは、蒸留による純化後の値として波長 400nm の光に対して 12m 以上の透過長がある。

本研究においても、この 400nm の光に対する透過長を用いて液体シンチレータの性能を議論する。

A.3 実験装置

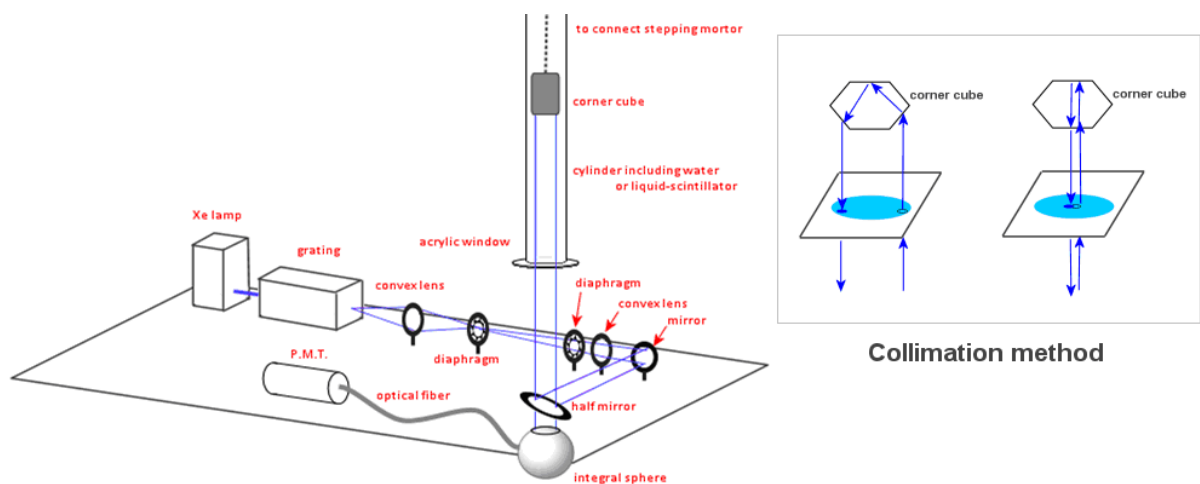


Fig. A.2 透過長測定装置

実験装置の概観を (Fig.A.2) に示す。

基本的な原理を以下に述べる。光源からの白色光を回折格子によって単色化し、屈折光学系を用いてこれを平行光線とする。絞りによって直径 18mm のビームとなった光束は、ハーフミラーを通じてその半分が透明なアクリル窓を通じて液体シンチレータの入った容器内に導入される。

透過長測定容器の末端でコーナーキューブによって入射方向に再帰性反射された光束は、再度ハーフミラーを介して積分球へと収められ、光ファイバーケーブルを通じてその強度を光電子増倍管 (PMT) によって計測される。コーナーキューブの位置を変えることで、複数のトラック長での光減衰率を計測することができ、これらの結果に (A.1) 式をフィッティングすることで高精度の透過長測定を可能とするものである。

A.3.1 光源

光源には、浜松ホトニクス社製のキセノンランプ単色光源セットを用いた。キセノンアークランプは、石英ガラス管内に封入したキセノンガスに対して高電圧をかけ、アーク放電によって発光を得るものであり、次に挙げるような利点をもつ。²⁹⁾

- 高輝度の点光源である。
- 演色性に優れる。
- 電気入力に対して瞬時に追従し、安定する。
- 電気入力の変化に対してスペクトル分布が不変。

本研究においては、光源からの光をコンデンサーレンズを通じて平行光線のビームとして透過長測定に利用する。そのため、高輝度の点光源であることはビームの強度及び平行性に寄与する。

また、波長 300nm から 650nm の領域において自然昼光に近い安定した連続スペクトル分布を示すため、液体シンチレータの透過長の波長依存性を調べる場合に有用である。のこる二つの特徴も、実験の再現性を高める上で優れた特性であるといえる。この点については次節で詳しく議論する。

A.3.2 回折格子・PMT

回折格子には同じく浜松ホトニクス社製の AT-120PM を用いた。PMT、電源、アンプなどのシステムも同社製 SPG-120 によって一体化したシステムとして運用できる。

このシステムによって波長幅 1.5nm の精度で 190nm から 700nm までの波長を連続的にスキャンすることができる。操作は自動化され、コンピュータ上から計測範囲の選択、PMT の設定、出力の解析まで一括して行うことができる。

A.3.3 光学系

回折格子で単色化された光はある程度の広がりをもって出力されるため、焦点距離 300mm の両凸レンズを用いて集光する。レンズの諸収差の影響を軽減するため、焦点位置に絞りを設けて改めて点光源に近似し、これを焦点とする焦点距離 150mm の片凸レンズで平行光線を得た。なお、ビーム直径を決定するしぼりは片凸レンズの直前に設けた。ビームのコリメートは、約 9m 離れた実験室の壁に投影した光束が明瞭かつ直径が不変になるように調整した。なお、レンズは単レンズであるため、波長によって焦点距離が僅かに異なり、結像位置が変化することが知られている。(軸上色収差)

今回の実験では 400nm の波長を主なターゲットとして測定を行っているが、この波長は紫外線に近く、目視でビームを確認することが容易ではない。したがって、より視認性がよく波長の近い 450nm の単色光を用いて光学系のセットアップを行っている。

平行化された光束はミラーによって直角に反射され、ハーフミラーを通じて透過長測定容器に導入される。容器の末端でコーナーキューブによって入射したのと同じ方向に反射された光は、再びハーフミラーを介して積分球に収められる。

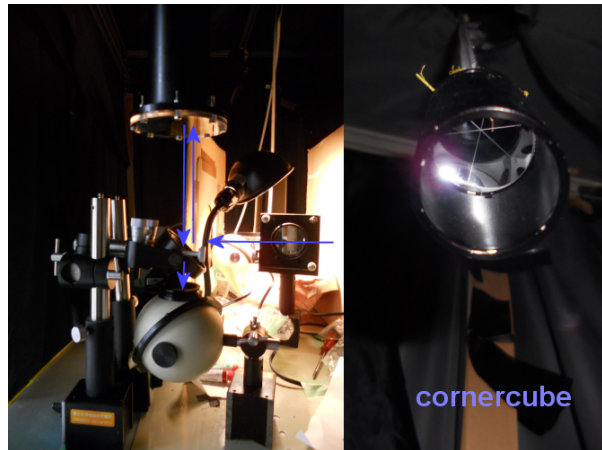


Fig. A.3 透過長測定装置 写真

A.3.4 透過長測定容器

透過長を測定しようとする液体シンチレータをはじめとする液体は、(Fig.A.3)の左の写真上部に示された金属製の円筒内部に納められる。容器の容量は約 7.5 l で、下部は透明なアクリル製の窓となっている。

アクリルは紫外線の透過率に問題があることが知られているが、今回測定しようとする波長域では影響は少ない。容器の上端は解放され、コーナーキューブの位置を移動させるためのナイロンと金属からなるチェーンが通れるようになっている。このチェーンはコンピュータ制御のステッピングモーターに接続され、コーナーキューブの位置を電子的に制御することができる。

予備調査によってステッピングモーターの回転角 5000 ステップあたりの移動量が 44mm と校正されている³⁰⁾。位置決定の誤差は 1 mm 程度で、これは実験を行ううえで十分な精度である。

本研究では、アクリル窓による光の反射の影響を相殺するために、アクリル窓から 10cm 程度上の位置に相当する Step=-10000 での光強度を初期値とし、20000Step 毎に-150000Step 相当の距離まで測定した。実際のトラック長は、コーナーキューブでの反射によって約 2 倍の長さを通過するため、ステップ数とトラック長の関係は以下ようになる。

Table A.1 測定を行った Step 数とトラック長の関係

Step 数	-150k	-130k	-110k	-90k	-70k	-50k	-30k	-10k	-150k
トラック長 (cm)	246.4	211.2	176	140.8	105.6	70.4	35.2	0	246.4
								基準値	再測定

A.4 実験方法

A.4.1 キセノンランプの安定性

液体シンチレータの透過長を測定する上で大きな誤差要因となるのは、光源の出力のゆらぎである。実験にあたり、まず透過長測定容器を空気で満たした状態で光源の出力安定性を見た。(Fig.A.4)に示したのは、連続して同一のトラック長を5回測定し、そのPMT出力の揺らぎをみたものである。紫外線の領域では光量不足による誤差が拡大しているが、今回関心のある380nm 450nmの領域では概ね $\pm 0.5\%$ 程度の範囲に出力の揺らぎが収まっている。一回の測定に2分程度時間がかかるので、この結果は10分程度の短いスパンでの時間安定性をみているということができる。また、この揺らぎはコーナーキューブの位置、すなわちトラック長に依存しないことも確認された。

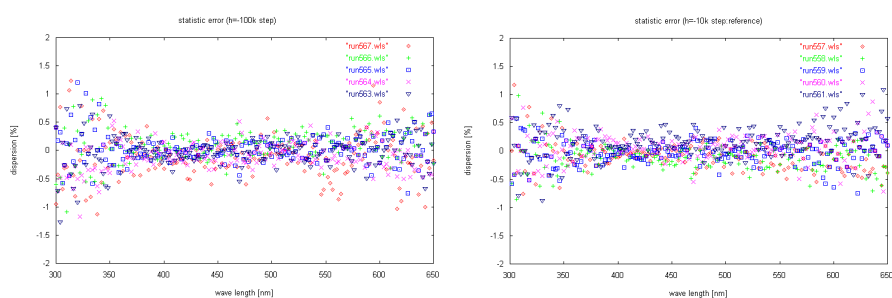


Fig. A.4 光源の短期時間安定性

次に、すべてのトラック長での測定を完了するのに実験開始から2時間程度必要であるため、数時間オーダーの比較的長いスパンでの光源の時間安定性をみた。結果を(Fig.A.5)に示す。この結果から、120分あたり3.4%程度の単調な光量の低下が認められた。

そのため、透過長測定実験の際は、最初と最後に同じトラック長での光強度を測定し、単位時間当たりの光源の出力低下を随時もとめて結果を補正することとした。

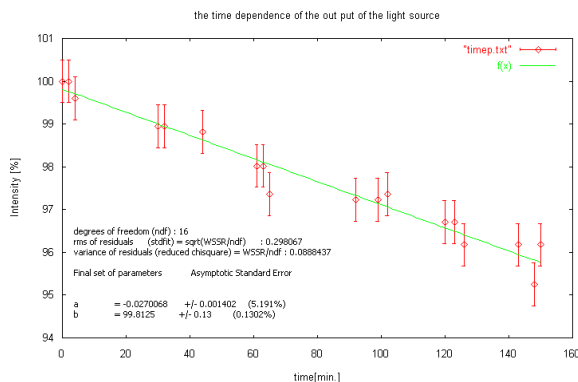


Fig. A.5 光源の長期時間安定性

A.4.2 空気・水・超純水での性能評価

セットアップされた透過長測定装置の性能を評価するため、まず水道水およびニュートリノセンター所有の超純水製造装置、ミリポア製 DirectQ 3UV によって作られた超純水の透過長を測定した。重水を用いたチェレンコフカウンターで知られるカナダの SNO 実験に際して行われた測定³¹⁾では、波長 442nm の He-Cd レーザー光に対して以下の透過長が報告されている。

Table A.2 SNO における水の透過長測定結果

Water sample	Attenuation length	dry run
水道水	1.86m	50.7m
3 μ フィルター	4.77m	48.8m
逆浸透膜	34.2m	455m
イオン交換膜	192m	697m

水道水の品質や純水装置の性能、透過長測定容器の清浄度などによって値は異なるので参考程度ではあるが、この結果は透過長測定装置が正しく機能しているか判断する目安になると考えられた。この結果を以下に示す。なお、この測定の際には光源の時間安定性や、後述するドライ・ランの影響を考慮していなかったため、フィッティング結果に対して後から補正を加えた。

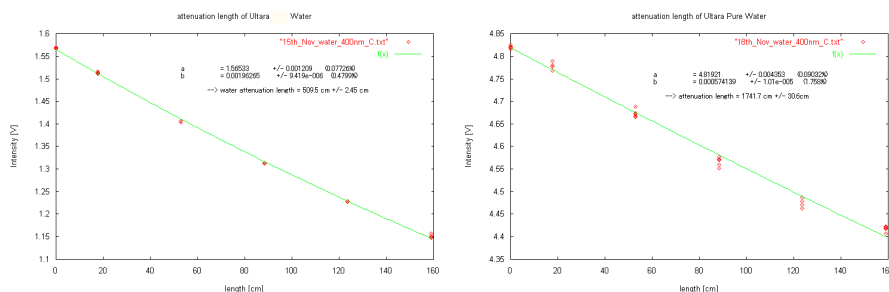


Fig. A.6 水、及び超純水の透過長測定結果

Table A.3 水の透過長測定結果

対象	透過長 (cm)	誤差	+ 時間安定性による補正	(+ ドライランによる補正)
水道水	509.5	$\pm 2.5(0.5\%)$	+ 55.8(11%)	(+ 206.3)
超純水	1741.7	$\pm 30.6(1.8\%)$	+540.7(31%)	(+6780.2)

グラフを見ると、特に水道水の場合において光の強度が (A.1) 式で表される指数関数にきれいに従っていることがわかる。透過長のオーダーも SNO の結果と比して妥当であると判断できる。しか

し、次節に述べるドライ・ラン結果を用いた補正を行うと、この値は大きくずれる。水の品質は絶対的な基準が存在しないため、これをもって装置の性能を判断するのは不十分であるとされた。したがって、最終的には次々節でのべる、既知の透過長を持つ液体での検証が必要となった。

A.4.3 空気によるドライ・ラン測定

透過長測定装置の性能を評価するため、透過長測定容器内に空気を満たした状態での透過長を測定した。この結果をドライ・ランと称する。空気は可視光に対してほぼ完全に透明であると考えられるので、光は減衰せず、桁違いに長い透過長が測定されると期待される。(Table A.2) に示した SNO での計測では、数十から数百メートルの結果が得られており、このばらつきは光軸のミスアライメントであると推測されている。

本実験でもこのドライ・ランにおける透過長を測定することで、光軸の調整具合を確かめると共に、実験精度を考える上での目安とした。

まずはじめに、透過長測定容器底部の亚克力窓を取り払って純粋に空気内だけに光束を通して、その透過長をみた。結果を Fig.A.7 に示す。計測回数は各位置毎に 5 回である。

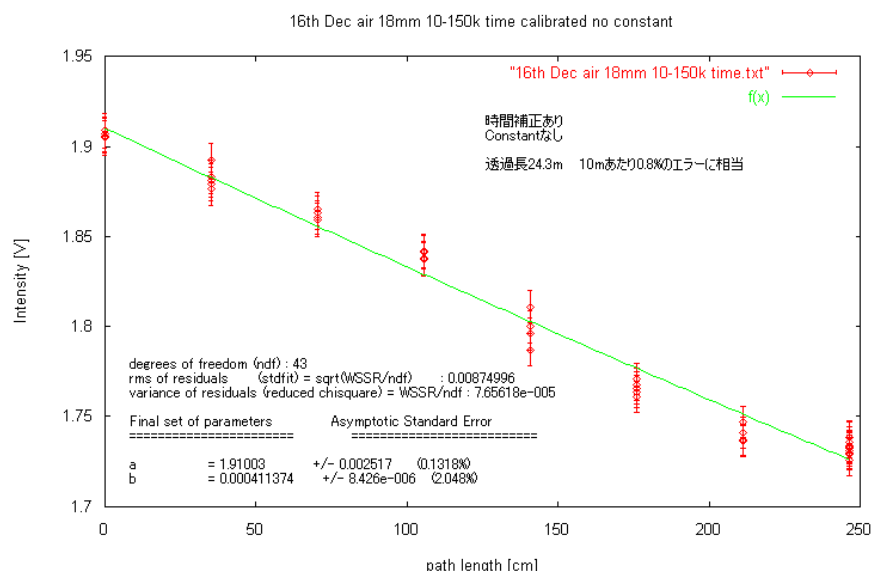


Fig. A.7 アクリル窓なしの空気の透過長

この結果から、実験室の空気の透過長は $24.3 \pm 0.5\text{m}$ であると求められた。これは SNO の実験結果と比べても低い数値であり、17m 先からの光は約半分になってしまう計算である。この大きな減衰の原因として、ビームのコリメートが不完全で、平行となっておらず、そのため光軸上でビームにケラレ等が生じている可能性が考えられた。

この可能性を検証するため、ビームの直径を元の 18mm と 12mm に絞ったものの 2 種類で同一条件の測定を行った。もしもビームがケラレしているとすると、ビームを細くすることでその影響が小さくなると考えられる。

また、実際の測定条件に近づけるため、亚克力窓を設置して測定を行った。結果を以下に示す。

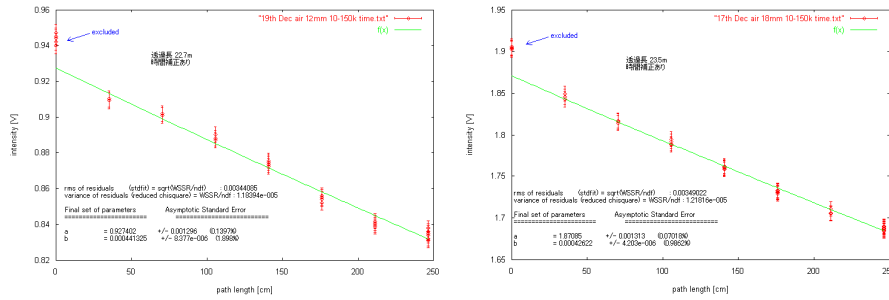


Fig. A.8 ビーム直径によるドライ・ラン透過長の変化

Table A.4 ビーム直径とドライラン透過長の関係

ビーム直径	透過長
12mm	22.7 ± 0.4m
18mm	23.5 ± 0.2m

両者の透過長の違いはほぼ誤差の範囲にあり、この23m前後というドライ・ランの結果は光路上の障害物によるケラレが原因ではないと結論できる。また、コーナーキューブ表面における拡散反射や、コリメート不全によるビームスポットの広がり等の影響も考慮したが、これらはトラック長/2の二乗に比例して光強度が減衰するはずであり、いずれもこの短い透過長の原因を説明することができなかった。実際の空気の透過長が20m程度しかないとは考えにくいので、原因は不明だがこの透過長を無限長であると仮定して逆補正を施した結果を、以後の実験結果に併記することとする。なお、Fig.A.8では、他の測定の際には見られなかったトラック長0における特異的な光強度の増加が認められる。これは、空気の屈折率が水や液体シンチレータの屈折率と大きく異なるために、アクリル板と空気の境界において強い反射が発生し、それがアクリル板から数cm程度と近い位置であるトラック長0の基準点において2次の反射光となっているものと考えられる。よって、ドライ・ラン時の透過長計算では、トラック長0における数値は除外して(A.1)式の当てはめを行った。最終的な目標である液体シンチレータの透過長を測定する直前に行ったドライ・ラン結果を以下に示す。このデータを用いて、実際の測定結果のドライ・ラン補正を行った。結果は $\phi=18\text{mm}$ で透過長=22.3 ± 0.4mであった。

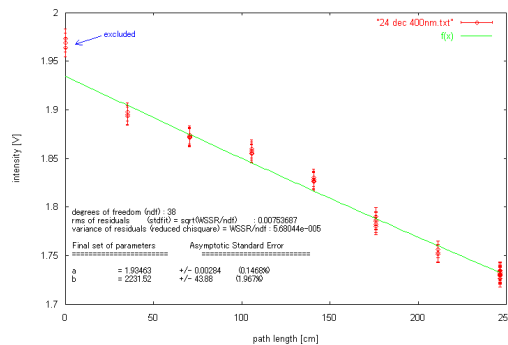


Fig. A.9 測定に用いた光学系のドライラン結果

A.5 カムランド液シンの透過長測定結果

ここまでの試験結果をふまえ、波長 400nm における透過長が 12m 前後¹と明らかになっている実際の KamLAND からサンプリングされた液体シンチレータの透過長を測定し、透過長測定装置の最終的な性能を試験した。結果を (Fig.6-10) に示す

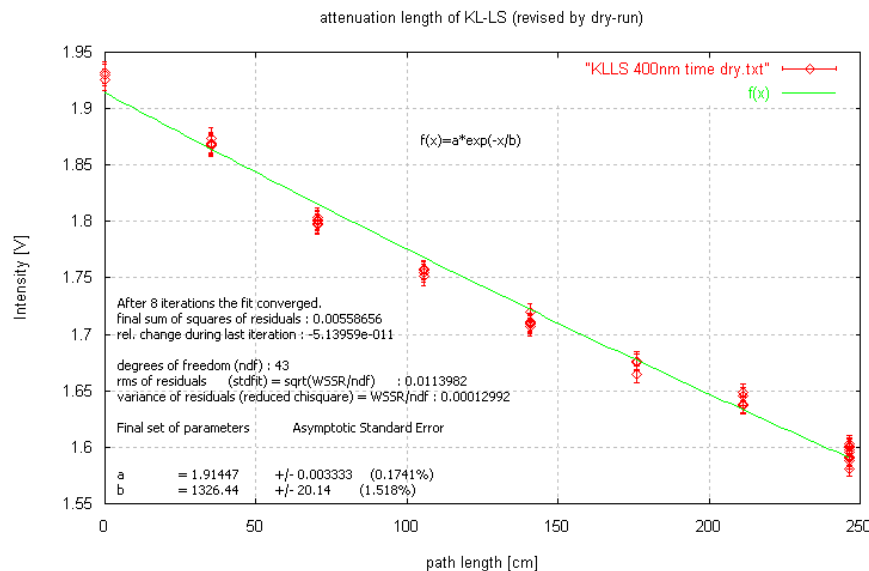


Fig. A.10 カムランド液シンの透過長測定結果

このときの透過長は、ドライラン補正なしだと 837.7 ± 8.11 cm、ドライラン補正ありだと 1326.4 ± 20.1 cm である。ドライラン補正を加えた LS の透過長は、以前測定された 12m という透過長と比較しても妥当なものであると考えられる。

A.6 考察

これら一連の測定から、今回準備した透過長測定装置は十分な精度で LS の透過長を測定する能力があることが示された。実際に KamLAND-Zen 実験で使われる Xe-LS に Xe を溶かして透過長の変化をみるためには、実際に KamLAND が設置されている坑内の蒸留プラントで純化した清浄な LS を用いて透過長を測定する必要があり、これは今後の課題である。

また、ドライ・ランにおける透過長が短く、大きな補正を必要とする原因はよくわかっておらず、光軸の再調整や光学系の再設計などが KamLAND-Zen 実験が開始されるまでに解決すべき改善点として残されている。

¹ATLES による 2007 年の測定で 2m³タンクからのサンプルが 12.05 ± 0.37 m