

修士論文

KamLAND2-Zen 実験へ向けた集光ミラーの研究と液  
体シンチレータの性能評価

Study of light collecting mirror and performance evaluation of liquid scintillator  
for KamLAND2-Zen

東北大学理学研究科  
物理学専攻

中島梨花

令和五年

## 概要

ニュートリノはスピン 1/2 の電荷を持たないフェルミ粒子である。ニュートリノは 1930 年に提唱され、振動していることがわかっている。しかし、未だに解明されていない点も多いため、ニュートリノを出さない二重  $\beta$  崩壊 ( $0\nu 2\beta$ ) 探索を行うことで解明を図っている。

KamLAND-Zen 実験でも  $0\nu 2\beta$  探索を行っているが、未だ発見に至っていない。そこで、光量増加と低バックグラウンドを実現させる KamLAND2-Zen 実験が計画されている。本研究では、検出器にインストールするミラーの材質の選定と液体シンチレータの性能評価、KamLAND2-Zen 実験のプロトタイプ検出器で行ったデータ解析を行った。

集光ミラーについては反射率測定と純水、バッファオイルの加速劣化試験を行い、A 社製のアクリル基板、Al 蒸着、アクリル系樹脂トップコートミラーが適していることがわかった。多角形ミラーを作成してプロトタイプ検出器にインストールし、集光量は 1.7 ~ 2.3 倍であることがわかった。

また、液体シンチレータについてはまず性能評価を行った。先行研究より液体シンチレータには  $0\nu 2\beta$  崩壊のバックグラウンドとなる  $^{232}\text{Th}$  が多く含まれることがわかっている。そこで、液液抽出による純化を行い、発光性能が低下しないことも確認した。また、液液抽出によって含水量が増えることを考慮して窒素バブリング時間の最適化を行った。その結果、窒素バブリング体積は液体シンチレータ体積の 25 倍必要であることがわかった。それらを確認後、30 L 液体シンチレータを作成し、液液抽出、窒素バブリングを行い、プロトタイプ検出器にインストールした。

本研究では 2023 年 4 月から 2023 年 12 月までプロトタイプ検出器で測定したデータを解析した。Tl の 2.6 MeV の  $\gamma$  線でエネルギーキャリブレーションを行い、奇形の run があった場合には時間依存性カットやフラッシュャーカットを行った。また、LAB-LS における  $^{212}\text{Po}$  の  $\alpha$  クエンチングの測定を行った。まず  $^{214}\text{Bi}$  と  $^{214}\text{Po}$  の同時遅延計測を行ってから、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  を用いた後方散乱イベントを用いて LAB-LS における  $^{214}\text{Po}$  の  $\alpha$  線の見かけのエネルギーを  $872.3 \pm 40.9$  keV、クエンチングファクターを  $\frac{1}{8.81 \pm 0.41}$  と求めた。また、 $\alpha$  線のエネルギーと見かけのエネルギーは Birks の式に従うことがわかっており、 $^{214}\text{Po}$  (7.69 MeV) が 0.872 MeV のとき、 $^{212}\text{Po}$  (8.95 MeV) は  $1.12 \pm 0.05$  MeV になる。 $^{212}\text{Bi}$  を先発信号、 $^{212}\text{Po}$  を後発信号とした同時遅延計測を用いて  $^{232}\text{Th}$  を推定した。先発信号のカットを 1.0 ~ 4.0 MeV、後発信号のカットを 1.02 ~ 1.23 MeV、時間差を 0.2 ~ 1.5  $\mu\text{s}$  とすると検出効率は 59.7 % となった。この条件下で観測事象数は 0 event、解析時間は  $2.2 \times 10^7$  s となり、 $^{232}\text{Th}$  濃度の上限は  $1.6 \times 10^{-15}$  g/g となることがわかった。この値はシミュレーションで求めた感度と反ニュートリノ観測の要求は達成しているが、 $0\nu 2\beta$  崩壊の要求値には届いていない。したがって背景事象を解析的に除去する粒子識別などの別な手法も検討する必要がある。

# 目次

第 1 章	序論	1
第 2 章	ニュートリノ物理	3
2.1	ニュートリノ	3
2.2	ニュートリノ振動	3
2.2.1	ニュートリノ振動	3
2.2.2	太陽ニュートリノ	5
2.2.3	大気ニュートリノ	6
2.3	ニュートリノの質量階層構造	7
2.3.1	マヨラナ質量とシーソー機構	7
2.4	ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊	9
2.4.1	ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊探索実験	11
第 3 章	KamLAND 実験	13
3.1	KamLAND	14
3.1.1	液体シンチレータ	14
3.1.2	バッファオイル	14
3.1.3	光電子増倍管	14
3.2	KamLAND-Zen	15
3.2.1	液体シンチレータ	15
3.2.2	KamLAND-Zen 400	15
3.2.3	KamLAND-Zen 800	15
3.2.4	KamLAND-Zen 実験の背景事象	16
3.3	KamLAND2-Zen	18
3.3.1	シンチレーションバルーン PEN	19
3.3.2	大光量液体シンチレータ	19
3.3.3	集光ミラー	20
3.3.4	高量子効率 PMT	21
3.3.5	プロトタイプ検出器	21

3.3.6	キャリブレーション	23
<b>第 4 章</b>	<b>集光ミラー素材候補の性能評価</b>	<b>25</b>
4.1	反射率測定	25
4.1.1	反射率測定のセットアップ	26
4.1.2	反射率測定の誤差	27
4.1.3	反射率測定の結果	28
4.2	加速劣化試験	28
4.2.1	加速劣化試験の方法	29
4.2.2	透過率測定	30
4.2.3	加速劣化試験の結果	31
4.3	プロトタイプ検出器への多角形ミラーインストール	34
4.3.1	ミラー設置による光量増加の評価	35
4.4	KamLAND2-Zen に向けたミラー素材評価	35
4.4.1	O サンプルのセッティングによる誤差	37
4.4.2	反射率の評価	39
<b>第 5 章</b>	<b>液体シンチレータの純化</b>	<b>41</b>
5.1	性能評価	41
5.1.1	液液抽出	41
5.1.2	窒素バブリング	42
5.1.3	発光スペクトル測定	44
5.2	30 L 液体シンチレータ	45
5.2.1	液体シンチレータ作成	45
5.2.2	窒素バブリング	46
5.3	プロトタイプ検出器へのインストール	48
<b>第 6 章</b>	<b>放射性不純物量の測定</b>	<b>51</b>
6.1	データ取得	51
6.1.1	取得方法	52
6.1.2	解析方法	52
6.2	エネルギーキャリブレーション	53
6.2.1	キャリブレーション方法	53
6.2.2	mean 値の変化	54
6.2.3	キャリブレーションファクターの検証	56
6.3	イベントカット	57
6.3.1	時間依存カット	57
6.3.2	フラッシャーカット	57
6.4	$^{232}\text{Th}$ 濃度推定	60

---

6.4.1	$\alpha$ クエンチ . . . . .	62
6.4.2	$^{214}\text{Po}$ から $^{212}\text{Po}$ への変換 . . . . .	65
6.4.3	$^{212}\text{Bi}$ と $^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測 . . . . .	65
第 7 章	結論	69
謝辞		71



# 目次

2.1	素粒子の標準模型	4
2.2	SNO が観測した太陽ニュートリノのフラックス	6
2.3	Super-Kamiokande が観測した大気ニュートリノイベントの天頂角分布	7
2.4	ニュートリノ質量階層構造	8
2.5	$2\nu 2\beta$ と $0\nu 2\beta$ のスペクトル	10
3.1	KamLAND 検出器	13
3.2	KamLAND-Zen 400 で得られたエネルギースペクトル	16
3.3	KamLAND-Zen 800 で得られたエネルギースペクトル。	16
3.4	KamLAND-Zen 800 で得られた有効質量の制限	17
3.5	検出器での $2\beta$ 崩壊のスペクトル	17
3.6	$^{212}\text{Po}$ のパイルアップ事象	18
3.7	$^{214}\text{Bi} - ^{214}\text{Po}$ の遅延同時計測	19
3.8	PEN の構造式	19
3.9	Bis-MSB の構造式	20
3.10	プロトタイプ検出器の概要図	21
3.11	プロトタイプ検出器建設作業	22
3.12	発光時間分布測定と 1 p.e. 測定の回路	24
4.1	ミラーサンプル概略図	25
4.2	反射率測定のための光学系	26
4.3	液体シンチレータの発光波長	27
4.4	測定データの例	27
4.5	キセノンランプの時間安定性	28
4.6	プロトタイプ検出器へインストールする候補となったミラーの反射率	29
4.7	サンプルの保管方法	30
4.8	透過率測定の概要図	30
4.9	加速劣化試験後 目視での変化	31
4.10	加速劣化試験後 反射率測定結果	32
4.11	加速劣化試験後の液体の透過率 (9 cm)	33

4.12	加速劣化試験後の液体の透過率 (2 m)	33
4.13	多角形ミラーの製作	34
4.14	ミラーインストール中の様子	35
4.15	ミラーの設置図	35
4.16	シンチレーション球を用いたミラー有無による光量増加評価のセットアップ	36
4.17	ミラー有無による光量増加の評価	36
4.18	O サンプル	37
4.19	ビームサイズの変更	37
4.20	O サンプル セッティングによる誤差	38
4.21	K から O のミラー 反射率測定	39
5.1	KamLAND で使用されている液液抽出	42
5.2	液液抽出の方法	42
5.3	発光量測定の概要図	43
5.4	窒素バブリングの概要図	43
5.5	発光量測定の結果	43
5.6	窒素バブリング時間と発光量	43
5.7	発光スペクトル測定の概要図	44
5.8	液液抽出有無による発光スペクトルの変化	44
5.9	攪拌の様子	45
5.10	ステンレス容器	45
5.11	分液漏斗内模式図	46
5.12	振盪の様子	46
5.13	窒素バブリング方法	47
5.14	窒素バブリングに使用した器具	47
5.15	タンク外での作業	48
5.16	タンク上部での作業	49
6.1	データ取得方法	52
6.2	データ取得から解析までの流れ	53
6.3	waveform analysis で取得できるデータ	53
6.4	データ解析方法	54
6.5	1 p.e. 補正	54
6.6	run29 のエネルギーキャリブレーション	55
6.7	mean 値の変化	55
6.8	タンク上部から見た CH1 の PMT	56
6.9	プロトタイプ検出器 純水透過率	56
6.10	線源を用いた測定	57



---

6.11	線源のキャリブレーション	58
6.12	時間依存ヒストグラム	59
6.13	時間依存カット前後	59
6.14	各 PMT の電荷分布の比	59
6.15	CH13 カット前後	60
6.16	エネルギー分布安定性	60
6.17	$^{212}\text{Bi}$ と $^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測 模式図	61
6.18	KamLAND-Zen での $^{212}\text{Bi}$ と $^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測	61
6.19	Rn バブリング	62
6.20	$^{214}\text{Bi}$ と $^{214}\text{Po}$ の発光量測定	63
6.21	$^{137}\text{Cs}$ の後方散乱イベントによる発光量測定	64
6.22	$^{60}\text{Co}$ の後方散乱イベントによる発光量測定	64
6.23	エネルギーキャリブレーション	64
6.24	real energy と visible energy の変換	65
6.25	各パラメータ散布図	66



# 表目次

3.1	KamLS の組成	14
3.2	XeLS の組成	15
3.3	LAB LS の組成	20
3.4	シンチレーション球の組成	23
3.5	LED 光源とシンチレーション球の性能	24
4.1	10 種のミラーサンプル	26
4.2	反射率測定結果 (400 nm,45 度)	28
4.3	各検出器の S/V 比	31
4.4	KamLAND2-Zen に向けて検証を行ったミラー	37
4.5	KamLAND2-Zen に向けて検証を行ったミラー	37
4.6	K から O サンプルの反射率	40
5.1	LAB LS の組成	41
5.2	$^{232}\text{Th}$ 濃度	42
6.1	$^{232}\text{Th}$ 濃度	51
6.2	線源を用いた後方散乱の発光量測定	63



# 第 1 章

## 序論

我々が暮らす世界は、素粒子によって構成されている。我々の研究対象であるニュートリノも素粒子の一種であるが、未解明の部分が多くある。例えば、相対質量はわかっているが、絶対質量はわかっていない。また、マヨラナ性を持つことが提唱されているが、証明には至っていない。それらの問題を解決するために世界では二重  $\beta$  崩壊探索実験 ( $0\nu 2\beta$ ) が進められている。我々が行っている KamLAND-Zen 実験も  $0\nu 2\beta$  を探索している。これまで世界最高感度で観測を進めてきていたが、半減期に制限を与えるのみで観測には至っていない。そこで、感度を向上させた KamLAND2-Zen 実験が計画されている。現在、プロトタイプ検出器での実証実験が進んでいる。

本論文では 2 章で前提知識としてニュートリノ物理と観測実験について述べ、3 章で KamLAND 実験について述べる。4 章でプロトタイプ検出器へのミラーインストール、KamLAND2-Zen 実験に向けたミラー素材の測定、5 章でプロトタイプ検出器にインストールした液体シンチレータについて、その後 6 章ではプロトタイプ検出器でのデータ取得と、前章で述べた液体シンチレータ内にどれくらいの  $^{214}\text{Th}$  が含まれているのか推定する。最後に、7 章で結論を述べる。



## 第 2 章

# ニュートリノ物理

### 2.1 ニュートリノ

物質を構成する最小単位を素粒子と呼ぶ。素粒子同士の相互作用には四種類ある。重力相互作用・強い相互作用・弱い相互作用・電磁相互作用である。そのうち、重力相互作用のみを除いた強い相互作用・弱い相互作用・電磁相互作用の三種類の相互作用に基づいているのが標準理論である。標準理論では、ほとんどすべての素粒子実験を説明できる。素粒子標準模型における基本粒子を図 2.1 に示す。ニュートリノはスピン  $1/2$  をもつフェルミ粒子である。ニュートリノは 1930 年にパウリによって予言された。パウリは、 $\beta$  線について詳しく調べ、 $\beta$  線が出る前後の全体のエネルギーを比べて出た後のエネルギーのほうが少ないことに対して、「見えない粒子がエネルギーを持ち出している」という仮説を立てた。その後、アメリカの物理学者ライネスとコーワンは、原子炉から生まれるニュートリノを捕まえることに成功した。命名から 20 年以上もたつての発見だった。また、ゴールドハーバーらによってニュートリノのヘリシティはすべて左巻き、反ニュートリノのヘリシティはすべて右巻きであることがわかった。標準理論では、ニュートリノの質量は 0 であると仮定されたが、ニュートリノ振動の証明によってニュートリノに質量が存在することがわかった。ニュートリノ振動については次節で説明する。

### 2.2 ニュートリノ振動

ニュートリノ振動とは、生成時に決定されたニュートリノのフレーバーが後に別のフレーバーとして観測される現象である。これは太陽ニュートリノ問題や大気ニュートリノ異常から示唆された現象であり、ニュートリノが質量を持つことの証明となった。

#### 2.2.1 ニュートリノ振動

ニュートリノのフレーバー固有状態  $|\nu_\alpha\rangle$  ( $\alpha = e, \mu, \tau$ ) は質量固有状態  $|\nu_i\rangle$  ( $i = 1, 2, 3$ ) の重ね合わせとして表わされ、

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}^* |\nu_i\rangle \quad (2.1)$$

## 素粒子の標準模型

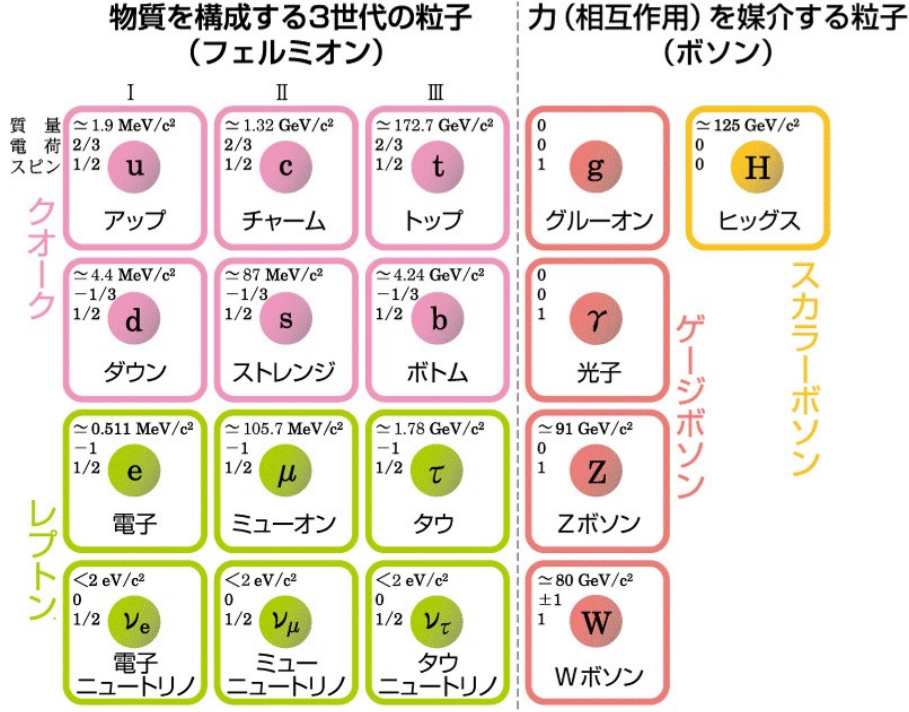


図 2.1 素粒子の標準模型

となる。式 (2.1) で  $U_{\alpha i}^*$  は牧-中川-坂田 (MNS) 混合行列と呼ばれるユニタリー行列である。この行列は以下のように書き下せる。

$$\begin{aligned}
 U_{\alpha i} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & c_{23} & s_{23} \\ 0 & -s_{23} & c_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{13} & 0 & s_{13}e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -s_{13}e^{i\delta} & 0 & c_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{12} & s_{12} & 0 \\ -s_{12} & c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\
 &= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} - s_{12}c_{23} & -s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} + c_{12}c_{23} & s_{23}c_{13} \\ -c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} + s_{12}s_{23} & -s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} - c_{12}s_{23} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (2.2)
 \end{aligned}$$

ここでは質量固有値  $m_i$  および  $m_j$  をもつ状態の混合角を  $\theta_{ij}$  とおき、 $s_{ij} \equiv \sin \theta_{ij}$ 、 $c_{ij} \equiv \cos \theta_{ij}$  とした。また  $\delta$  は CP 位相と呼ばれ、CP 対象性の破れを表す。質量固有状態の時間発展はシュレディンガー方程式

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\nu_i\rangle = E_i |\nu_i\rangle = -\frac{1}{2m_i} \frac{\partial^2}{\partial t^2} |\nu_i\rangle \quad (2.3)$$

を解き、

$$|\nu_i(\tau_i)\rangle = e^{-im_i\tau_i} |\nu_i(0)\rangle \quad (2.4)$$

のように表される。ここで  $\tau_i$  は静止系での  $\nu_i$  の時間を表す。実験室系では式 (2.4) において

$$e^{-im_i\tau_i} = e^{-i(E_it - p_iL)} \quad (2.5)$$



とすれば変換できる。 $t$  は実験室系での時間、 $L$  は位置を、 $E_i$  は  $\nu_i$  のエネルギー、 $p_i$  は運動量をそれぞれ表す。ニュートリノの質量は十分小さく、相対論的に運動するため  $p_i \gg m_i$ 、 $E \simeq p_i$  と近似が可能であり、

$$E_i = \sqrt{m_i^2 + p_i^2} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2p_i} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2E} \quad (2.6)$$

よって、フレーバー  $\alpha$  が距離  $L$  を伝播したのち  $\beta$  に変化する確率は、

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(L) \rangle|^2 \\ &= \left| \sum_i U_{\alpha i}^* U_{\beta i} e^{-i \frac{m_i^2}{2E} L} \right|^2 \\ &= \sum_{i,j} U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^* \exp\left(-i \frac{\Delta m_{ij}^2}{2E} L\right) \end{aligned} \quad (2.7)$$

となる。ここで  $\Delta m_{ij}^2 \equiv m_i^2 - m_j^2$  である。これ以降、簡単のため 2 成分のみでニュートリノ振動を考えると

$$U_{\alpha i} = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

と表され、式 (2.7) は

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= 2 \cos^2 \theta \sin^2 \theta + 2 \operatorname{Re} \cos^2 \theta \sin^2 \theta \exp\left(-i \frac{\Delta m_{12}^2}{2E} L\right) \\ &= \sin^2 2\theta \sin^2 \left(\frac{\Delta m_{12}^2}{4E} L\right) \\ &= \sin^2 2\theta \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m_{12}^2 [eV^2]}{E [GeV]} L [km]\right) \end{aligned} \quad (2.9)$$

となる。

### 2.2.2 太陽ニュートリノ

太陽からは pp 連鎖反応と CNO サイクルという核融合の連鎖によって  $\nu_e$  が生成される。pp 連鎖反応と CNO サイクルはともに以下の式で表される。このように生成されるニュートリノを太陽ニュートリノと呼ぶ。



この式を利用して太陽の放出エネルギーの観測値から、地球で観測できる太陽ニュートリノの量を予測できる。初めて太陽ニュートリノが観測された 1968 年にデービスが行った実験では、ホームステイク金鉱の地下 1500 m に 615 トンの  $\text{C}_2\text{Cl}_4$  を満たしたタンクを設置し、以下の反応で生成されるアルゴンを約一ヶ月ごとに回収して崩壊数を計測した。



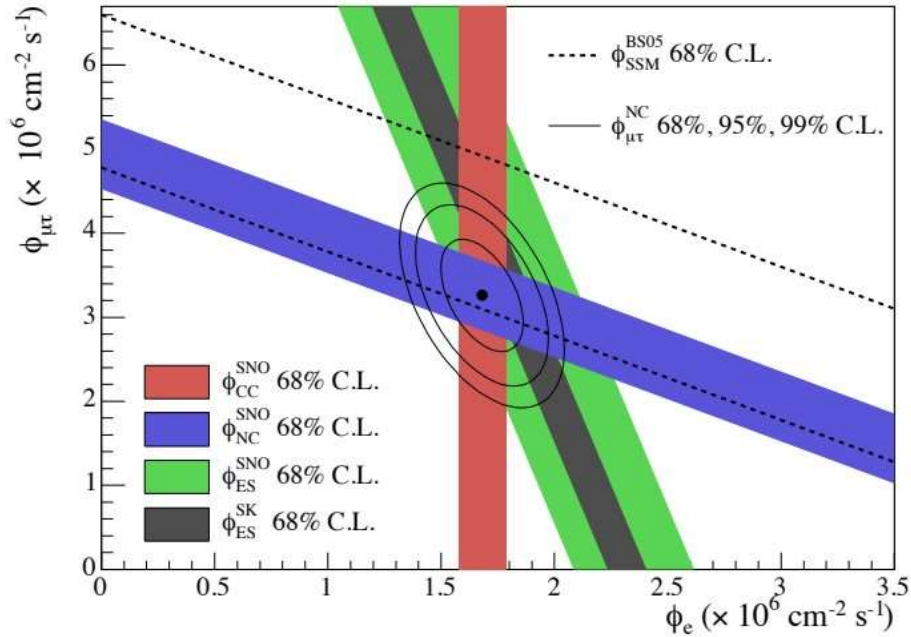


図 2.2 SNO が観測した太陽ニュートリノのフラックス

アルゴンの生成率に寄与するのは主に太陽の pp 連鎖反応のうち不安定な  $^8\text{B}$  が崩壊するときに放出されるニュートリノである。この実験によって観測されたアルゴンの生成率は、標準太陽モデルの予想値の 1/3 しかなかった。また、2002 年に SNO 実験は重水を用いて下記の 3 種類の反応による観測を行った。



検出されるのは  $^8\text{B}$  ニュートリノである。3つの反応をとらえることでニュートリノフラックス全体とそれに占める電子ニュートリノの成分が同時に計測された。図 2.2 に SNO 実験で得られた太陽ニュートリノのフラックスを示す。総量は標準太陽モデルの予想と一致する一方、 $\nu_e$  の量は減少していることがわかった。これらのように地球を貫通していくニュートリノの観測数が、太陽内部の理論的モデルから予測されている値と一致しない問題を太陽ニュートリノ問題と呼び、ニュートリノ振動に対する一つの証明となっている。

### 2.2.3 大気ニュートリノ

大気ニュートリノとは、宇宙から高速で地球に降り注ぐ宇宙線が地球上の大気と衝突して生まれるニュートリノのことである。ミューニュートリノと電子ニュートリノの 2 種類のニュートリ

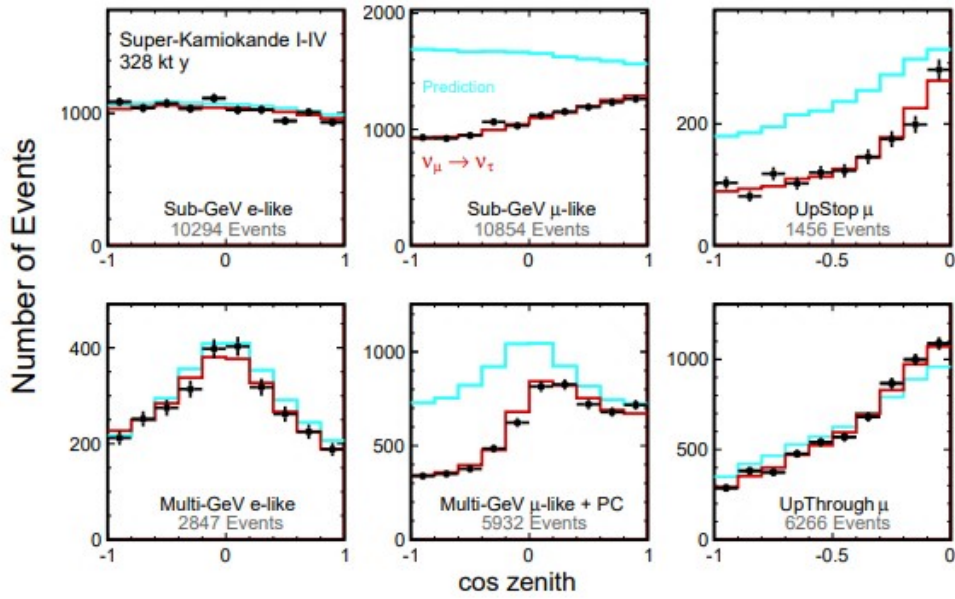


図 2.3 Super-Kamiokande が観測した大気ニュートリノイベントの天頂角分布。この図において水色はニュートリノ振動がない場合の分布、赤色はニュートリノ振動のフィットパラメータの分布を表している。

ノが生じる。

$$\pi^{\pm} \longrightarrow \mu^{\pm} + \nu_{\mu} \quad (2.15)$$

$$\mu^{\pm} \longrightarrow e^{\pm} + \nu_e + \bar{\nu}_{\mu} \quad (2.16)$$

この反応式から、理論的には  $\nu_{\mu}$ 、 $\bar{\nu}_{\mu}$  と  $\nu_e$ 、 $\bar{\nu}_e$  の比  $\nu_{\mu}/\nu_e \equiv (\nu_{\mu} + \bar{\nu}_{\mu})/(\nu_e + \bar{\nu}_e)$  が 2 になるはずだが、カミオカンデ実験やスーパーカミオカンデ実験において実際に観測された比はこれよりも小さくなっていた (図 2.3)。この現象は大気ニュートリノ異常と呼ばれ、これも先述したニュートリノ振動で説明できる。

## 2.3 ニュートリノの質量階層構造

今までの実験でニュートリノが質量を持つことはわかっている。しかし、現在わかっているのは質量の二乗差と  $m_1 < m_2$  であることだけであり、絶対値はわかっていない。ニュートリノ質量の階層構造は図 2.4 で示すモデルが許される。

### 2.3.1 マヨラナ質量とシーソー機構

マヨラナ粒子とは、粒子と反粒子が同一であるフェルミオンである。これは理論物理学者であるエttore・マヨラナによって 1937 年に考案された。ニュートリノは電氣的に中性であるた

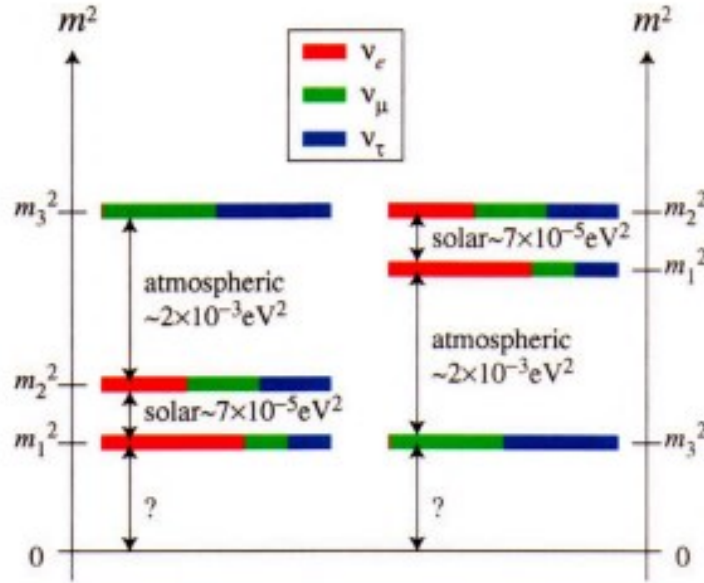


図 2.4 ニュートリノの質量階層構造。左 ( $m_1 < m_2 < m_3$ ) は順階層構造、右 ( $m_3 < m_1 < m_2$ ) は逆階層構造とよばれる。

め、マヨラナ粒子である可能性がある。ニュートリノがマヨラナ粒子であれば、ディラック方程式においてマヨラナ質量項を導入することができる。ニュートリノの波動関数  $\psi$  はディラック方程式

$$(i\gamma_\mu \partial^\mu - m)\psi = 0 \quad (2.17)$$

に従い、荷電共役変換  $C$  を

$$C : \psi \rightarrow \psi^C = i\gamma^2 \psi^* \quad (2.18)$$

と定義する。荷電共役変換は粒子と反粒子を入れ替える変換であり、ニュートリノがマヨラナ粒子と仮定すると粒子反粒子の区別がなくなるので、

$$\psi = \psi^C \quad (2.19)$$

が成り立つ。カイラリティ射影演算子を  $\gamma_L$ 、 $\gamma_R$  とすると、ニュートリノの左巻き及び右巻きカイラリティ成分は

$$\psi_L = \gamma_L \psi \quad (2.20)$$

$$\psi_R = \gamma_R \psi \quad (2.21)$$

で表され、 $\psi = \psi_L + \psi_R$  を満たす。荷電共役変換では以下のようにカイラリティが逆転する。

$$C : \psi_L \rightarrow (\psi_L)^C = i\gamma^2 (\gamma_L \psi)^* = \gamma_R (i\gamma^2 \psi^*) = (\psi^C)_R \quad (2.22)$$

同様に

$$C : \psi_R \rightarrow (\psi_R)^C = (\psi^C)_L \quad (2.23)$$

である。

ディラック方程式を満たすラグランジアン密度は

$$\mathcal{L} = \bar{\psi}(i\gamma^\mu \partial_\mu - m)\psi \quad (2.24)$$

と表され、この式の第一項は運動エネルギー、第二項はディラック質量項である。質量項を抜き出すと、

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{mass} &= m\bar{\psi}\psi \\ &= m(\bar{\psi}_L + \bar{\psi}_R)(\psi_L + \psi_R) \\ &= \frac{m}{4}[(\bar{\psi}_L + (\bar{\psi}_L)^C) + (\bar{\psi}_R + (\bar{\psi}_R)^C)][(\psi_L + (\psi_L)^C) + (\psi_R + (\psi_R)^C)] \\ &= \frac{m_D}{2}(\bar{\psi}_L)^C(\psi_R)^C + \frac{m_L}{4}\bar{\psi}_L(\psi_R)^C + \frac{m_R}{4}(\bar{\psi}_L)^C\psi_R + h.c. \\ &= \frac{1}{4}(\bar{\psi}_L \quad (\bar{\psi}_L)^C) \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (\psi_R)^C \\ \psi_R \end{pmatrix} + h.c. \end{aligned} \quad (2.25)$$

のように $2 \times 2$ の質量行列を用いて表される。 $m_D, m_L, m_R$ はそれぞれディラック質量、左巻きマヨラナ質量、右巻きマヨラナ質量である。左巻きのニュートリノが非常に軽く( $m_D \gg m_L \simeq 0$ )、右巻きのニュートリノが非常に重い( $m_D \ll m_R$ )とすると、質量行列の固有値 $m_\nu, m_N$ ( $m_\nu < m_N$ )は、

$$m_\nu = \frac{m_L + m_R}{2} - \frac{m_R}{2} \sqrt{1 + \frac{4m_D^2}{m_R^2}} \simeq m_L - \frac{m_D^2}{m_R} \ll m_D \quad (2.26)$$

$$m_N = \frac{m_L + m_R}{2} + \frac{m_R}{2} \sqrt{1 + \frac{4m_D^2}{m_R^2}} \simeq m_R \quad (2.27)$$

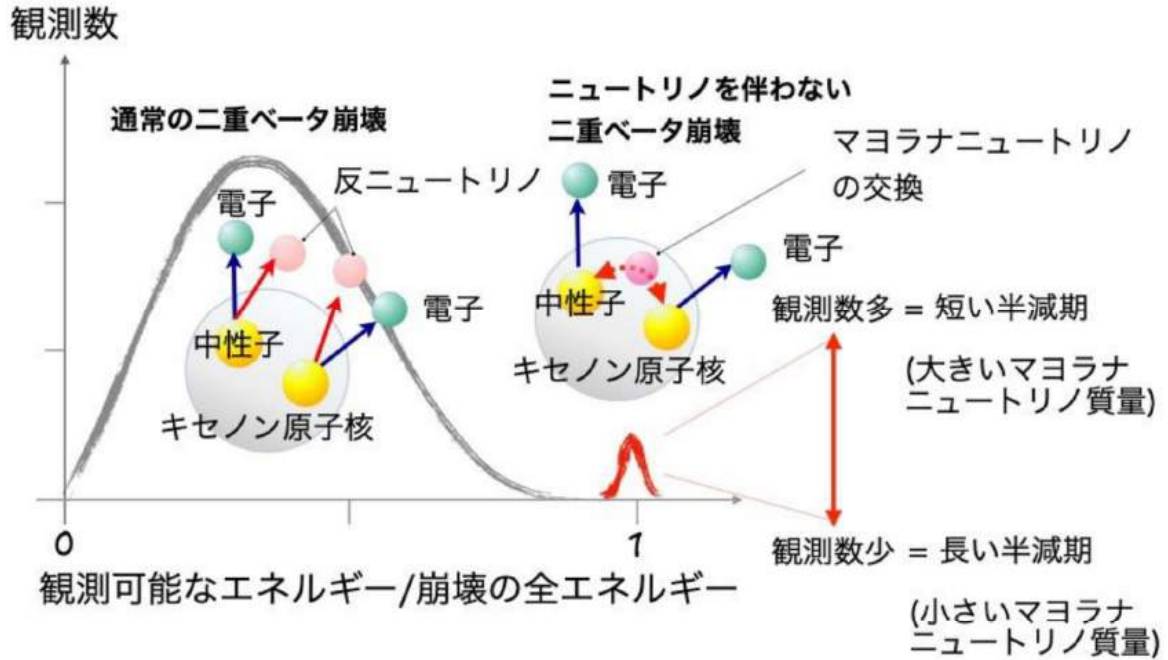
と近似できる。 $m_\nu$ が大きくなればなるほど $m_N$ は小さくなることから、この関係はシーソー機構と呼ばれている。シーソー機構により、ニュートリノがマヨラナ粒子であり重い右巻きニュートリノであると仮定することで、左巻きニュートリノの非常に軽い質量を説明することができる。また、右巻きのニュートリノが発見されていない理由も、その質量が非常に大きいため人工的に作り出すことができず、観測されていないのだと考えられる。つまり、ニュートリノがシーソー機構を持つと証明できれば宇宙物質優勢の謎などの宇宙の謎の解明に近づく。そのため、世界中で検証実験が行われている。ニュートリノのマヨラナ性を証明する方法として有力なものは次節で述べるニュートリノを伴わない二重 $\beta$ 崩壊である。

## 2.4 ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊

素粒子標準模型で許される反応として、二重ベータ崩壊( $2\nu 2\beta$ 崩壊、図 2.5)がある。

$$(Z, A) \rightarrow (Z, A + 2) + 2e^- + 2\bar{\nu}_e \quad (2.28)$$

この反応は弱い相互作用の2次のプロセスでレプトン数が保存する。通常のベータ崩壊を2回同時に起こすことによってより低いエネルギー準位に遷移できるような原子核で起こり、非常に稀

図 2.5  $2\nu 2\beta$  と  $0\nu 2\beta$  のスペクトル

有な事象である。一方ニュートリノを伴わない二重  $\beta$  崩壊 ( $0\nu 2\beta$  崩壊 (図 2.5)) ではレプトン数が反応の前後で保存しないため標準模型では許されず、ニュートリノがマヨラナ粒子である場合にのみ起こりうる。ここでは反ニュートリノが原子核内部で対消滅し、2つの電子のみが放出される。

$$(Z, A) \rightarrow (Z, A + 2) + 2e^- \quad (2.29)$$

通常の  $2\nu 2\beta$  崩壊ではニュートリノがエネルギーを持ち出すため電子のエネルギー分布は連続的になる。一方  $0\nu 2\beta$  崩壊では2つの電子が  $Q$  値を全て担うため  $2\nu 2\beta$  崩壊のスペクトルのエンドポイント付近にピークが見られるはずであるが、未だ発見には至っていない。

$0\nu 2\beta$  崩壊探索実験では、 $0\nu 2\beta$  崩壊の半減期  $T_{1/2}^{0\nu}$  を測定することでマヨラナ有効質量  $\langle m_{\beta\beta} \rangle$  に制限を与えることができる。

$$T_{1/2}^{0\nu} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (2.30)$$

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle = \left| \sum_{i=1}^3 U_{ei}^2 m_i \right| \quad (2.31)$$

ここで  $G^{0\nu}$  は位相空間因子、 $M^{0\nu}$  は核行列要素と呼ばれ、それぞれ理論計算により求められる。また  $U_{ei}$  は混合行列である。 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$  はニュートリノの質量の絶対値の情報を含む重要な物理量であり、質量階層構造により予想される値の範囲が異なる。

### 2.4.1 ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊探索実験

前述の通り、ニュートリノを伴わない二重  $\beta$  崩壊探索実験はニュートリノの性質を明らかにするためにとっても重要な役割を担っている。 $0\nu 2\beta$  崩壊探索のためには

1. 大量の二重ベータ崩壊核を用いること
2. 背景事象を徹底的に排除すること
3. エネルギー分解能が良いこと

が必要である。ここでは次章で述べる KamLAND-Zen 実験以外で主要なものについて言及しておく。

#### CUORE 実験

Cryogenic Underground Observatory for Rare Events(CUORE) 実験は  $^{130}\text{Te}$  におけるニュートリノを伴わない二重  $\beta$  崩壊を探索するために設計された  $\text{TeO}_2$  結晶を用いた検出器である。 $^{130}\text{Te}$  の自然存在比は 30 % 以上あるため、大量に用意することができることが強みである。低温に冷却した結晶を熱量計として用いており、 $0\nu 2\beta$  崩壊による電子のエネルギー損失を温度上昇として検出する。2017 年夏からデータ取得を開始し、現在は  $T_{1/2}^{0\nu} > 1.5 \times 10^{25}$  yr (90%C.L.) であることを解明している。

#### GERDA 実験

GERmanium Detector Array(GERDA) 実験では  $^{76}\text{Ge}$  で濃縮した多数のゲルマニウム半導体検出器を用いてグランサッソにて探索を行っている。 $^{76}\text{Ge}$  は高分解能を持ち、信号の波形情報による粒子識別と、液体アルゴンのシンチレーション光をとらえることでバックグラウンド寄与の低減が可能となった。その結果、半減期は  $T_{1/2}^{0\nu} > 1.8 \times 10^{26}$  yr (90%C.L.) であると制限を与えた。

#### EXO 実験

Enriched Xenon Observatory(EXO) 実験は  $^{136}\text{Xe}$  を用いて探索を行っている。EXO-200 実験は 200 kg の  $^{136}\text{Xe}$  を使用した米国ニューメキシコ州の WIPP の地下 700 m で行われた。TPC による飛跡検出と液体キセノンを組み合わせることでエネルギー分解能の向上を可能としている。EXO 実験によって半減期は  $T_{1/2}^{0\nu} > 3.5 \times 10^{25}$  yr (90%C.L.) となった。





## 第 3 章

# KamLAND 実験

KamLAND (Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector) 実験とは、岐阜県神岡鉱山内にある大型液体シンチレータである。2002 年に始まった当初は原子炉ニュートリノを用いて太陽ニュートリノ問題に挑戦することを第一の目的とした。その後、KamLAND では原子炉ニュートリノによるニュートリノの性質解明、ニュートリノ地球物理の創出、ニュートリノ天文学の推進、ニュートリノを伴わない二重  $\beta$  崩壊の探索の 4 つの研究をしている。2011 年からは KamLAND-Zen 400 実験、2019 年からは KamLAND-Zen 800 がスタートしている。この章では検出器の特徴について言及する。

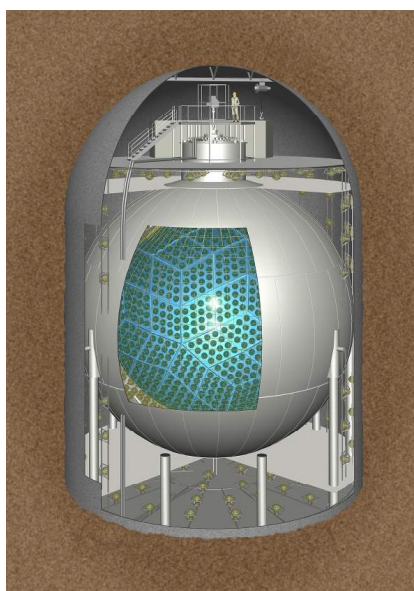


図 3.1 KamLAND 検出器

## 3.1 KamLAND

### 3.1.1 液体シンチレータ

液体シンチレータ (Liquid Scintillator,LS) はトルエン、キシレンなどの溶媒に蛍光物質の溶質を溶かし込んだものである。試料をこの溶媒に溶かし、試料からの放射線で生じるシンチレータの蛍光を光電子増倍管で測定し放射能濃度を計測する。KamLAND で用いられている液体シンチレータ (KamLS) の組成を表 3.1 に示す。ここでの溶媒はプソイドクメン、発光剤はジフェニルオキサゾールである。また、密度調整や透過率低下を防ぐためにドデカンも用いられている。カミオカンデやスーパーカミオカンデのような超純水を使った水チェレンコフ検出器に比べ、KamLAND の液体シンチレータは発光量が約 100 倍ほどあり、原料の有機液体は不純物が極めて少なく、安価で大量に入手できる上、透明度は高い。

表 3.1 KamLS の組成

物質名	分子式	密度	比率
ドデカン	$C_{12}H_{26}$	0.749 g/cm <sup>3</sup>	80%
プソイドクメン	$C_9H_{12}$	0.875 g/cm <sup>3</sup>	20%
ジフェニルオキサゾール	$C_{15}H_{11}NO$	—	1.36 g/l
KamLS	-	0.77721 g/cm <sup>3</sup>	-

### 3.1.2 バッファオイル

PMT とバルーンの間はバッファオイル (buffer Oil,BO) で満たされている。バッファオイルはドデカン  $C_{12}H_{26}$  が 53 %、イソパラフィン  $C_nH_{2n+2}$  が 47 % でできている。バッファオイルがあることによってバルーンに浮力を与え、タンクや PMT 由来の放射線が液体シンチレータに侵入しないように遮蔽する役割を持つ。

### 3.1.3 光電子増倍管

光電子増倍管 (PMT) は光子が光電面に当たって光電子が発生し、光電子が光電面と電子増倍部と陽極にかけられた高電圧に引き寄せられ、真空状態の内部を加速・増倍されながら進む。以上の過程を繰り返しシンチレーション光から電気信号を発生させる。KamLAND 実験ではカミオカンデで使用していた PMT を改良し、時間分解能とエネルギー分解能を大幅に向上させた。検出器の内壁には 20 インチ PMT が 554 本と改良型の 17 インチ PMT が 1325 本が設置されている。

## 3.2 KamLAND-Zen

KamLAND-Zen 実験とは先述した KamLAND 検出器を用いて  $0\nu 2\beta$  崩壊を探索したものである。KamLAND 検出器に加えてバルーンを導入し、液体シンチレータを設置した。

### 3.2.1 液体シンチレータ

KamLAND-Zen 実験で用いられている液体シンチレータには Xe が溶解している (XeLS)。その他の使用している物質は KamLS と変わらないが、Xe を溶解させることによる発光量低下に対応するため、KamLS と密度や割合が異なっている。(表 3.2)

表 3.2 XeLS の組成 [1]

物質名	分子式	密度	比率
ドデカン	$C_{12}H_{26}$	0.749 g/cm <sup>3</sup>	82.3%
プソイドクメン	$C_9H_{12}$	0.875 g/cm <sup>3</sup>	17.7%
ジフェニルオキサゾール	$C_{15}H_{11}NO$	—	2.7 g/l
キセノン	$^{136}Xe$	—	3.13 wt%
XeLS	-	0.77721 g/cm <sup>3</sup>	-

### 3.2.2 KamLAND-Zen 400

KamLAND-Zen 400 は 2011 年 9 月にスタートし、2015 年 10 月に終了した。2011 年の 10 月から 2012 年の 6 月までの Phase1 では福島原発事故のフォールアウト由来と思われる  $^{110m}Ag$  のバックグラウンドが見られた。そこで、液体シンチレータとキセノンガスの純化を行い 2013 年 12 月から Phase2 を開始させた (図 3.2)。Phase1 では 320 kg、Phase2 では 380 kg の Xe を溶かした液体シンチレータを使用した。その結果、 $^{136}Xe$  の  $0\nu 2\beta$  半減期の下限値  $T_{1/2}^{0\nu} > 1.07 \times 10^{26} \text{yr} (90\% \text{C.L.})$  という制限を与えた [2]。

### 3.2.3 KamLAND-Zen 800

KamLAND-Zen 800 は 2019 年 1 月から始まった。先述の KamLAND-Zen 400 からキセノン量を約 2 倍程度である 745 kg に増やし、ミニバルーンをより清浄度が高く体積を倍増したミニバルーンに取り替えた。KamLAND-Zen 400 での最大の背景事象は  $^{10}C$  であったが、Zen 800 では 99.3% 以上除去した。これによって新しい背景事象、ミューオンによるキセノン原子核破碎事象が明らかになった。これらの結果、半減期を  $T_{1/2}^{0\nu} > 2.3 \times 10^{26} \text{yr} (90\% \text{C.L.})$  と制限した。また、ニュートリノの有効質量の上限値  $\langle m_{\beta\beta} \rangle < 36 - 156 \text{meV}$  と世界最高感度を更新した。図 3.3 に得られたエネルギースペクトルを、図 3.4 に有効質量を表す。世界で初めて逆階層領域に踏み

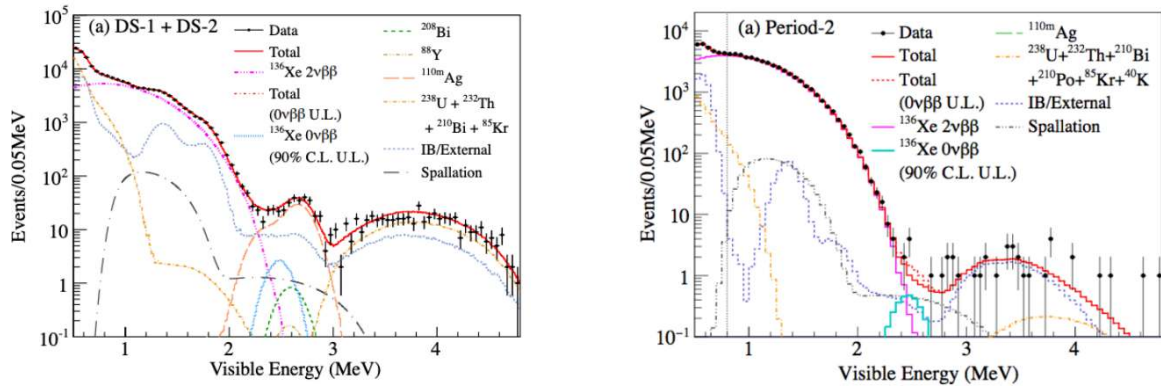


図 3.2 KamLAND-Zen 400 で得られたエネルギースペクトル。(左図)Phase1 (右図)Phase2

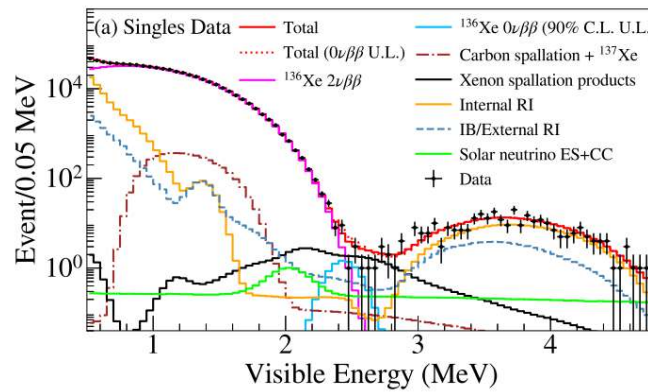


図 3.3 KamLAND-Zen 800 で得られたエネルギースペクトル。 $0\nu 2\beta$  崩壊のエネルギー領域は 2.5 MeV 付近の水色のスペクトル。

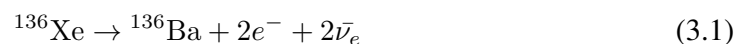
込んだ探索を進めている [3]。

### 3.2.4 KamLAND-Zen 実験の背景事象

先述の通り、未だに  $0\nu 2\beta$  崩壊は発見されていない。その一つの要因として図 3.3 のように、背景事象が多いことが挙げられる。本節では KamLAND-Zen 実験における主要な背景事象について述べる。

- $^{136}\text{Xe}$  の  $2\nu 2\beta$

KamLAND-Zen 実験では Xe の  $0\nu 2\beta$  崩壊を探索しているが、Xe は



の  $2\nu 2\beta$  崩壊もする。実際の検出器では、図 3.5 のように  $2\nu 2\beta$  崩壊と  $0\nu 2\beta$  崩壊のエネルギースペクトルは重なってしまうため、エネルギー分解能の向上によって見分ける必要がある。

- 長寿命不安定核

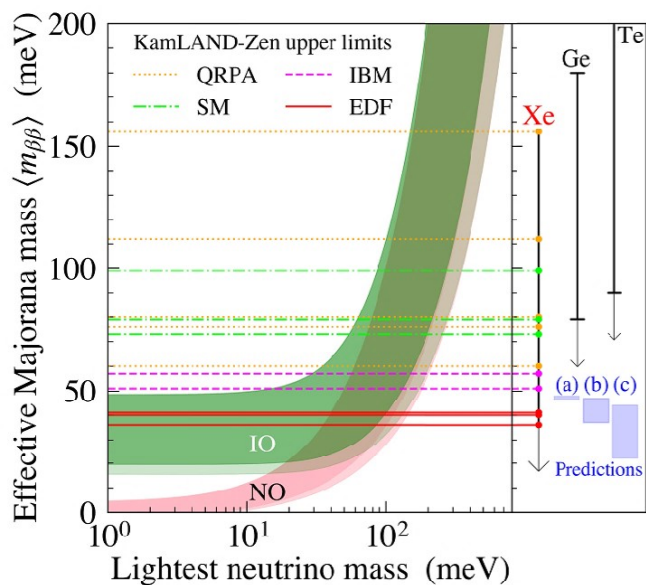


図 3.4 KamLAND-Zen 800 で得られた有効質量の制限。NO は順階層構造、IO は逆階層構造の場合のニュートリノの質量の予測 [4]。

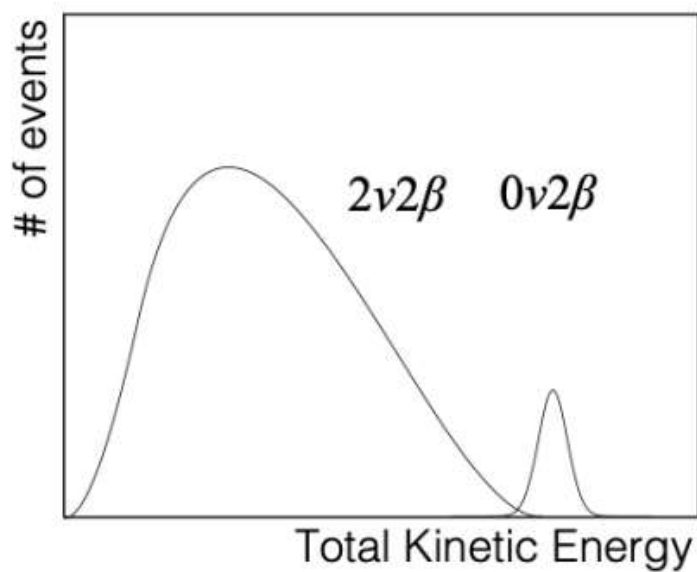


図 3.5 検出器での  $2\beta$  崩壊のスペクトル。

長寿命不安定核とは寿命が数分から数日の原子核のことであり、宇宙線ミュオンが Xe 原子核を破砕することで発生する。現在の検出器や解析手法では除去が難しいことがわかっている。

- $^{214}\text{Bi}$  の背景事象

$^{238}\text{U}$  系列の  $^{214}\text{Bi}$  は Q 値が約 3.27MeV で崩壊をし、ミニバルーンや液体シンチレータに含まれる。ミニバルーン中の  $^{214}\text{Bi}$  について現在の KamLAND-Zen の解析では  $0\nu 2\beta$

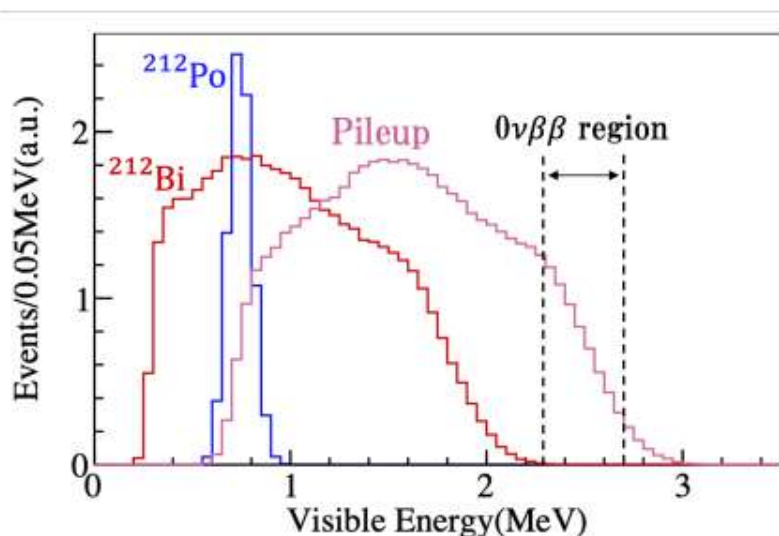


図 3.6  $^{212}\text{Po}$  のパイルアップ事象。赤線が  $^{212}\text{Bi}$  の  $\beta$  崩壊のエネルギースペクトル、青線が  $^{212}\text{Po}$  の  $\alpha$  崩壊の見かけのエネルギー、桃線が  $^{212}\text{Bi}$  と  $^{212}\text{Po}$  のイベントを合計したエネルギーのスペクトル。

崩壊探索を行う領域に制限をかけることで低減させている。また、液体シンチレータ中の  $^{214}\text{Bi}$  は  $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{214}\text{Po}$  の同時遅延計測によって除去している。

- $^{212}\text{Bi} - ^{212}\text{Po}$  のパイルアップ事象

$^{212}\text{Bi} - ^{212}\text{Po}$  は  $^{232}\text{Th}$  系列の崩壊である。 $^{212}\text{Bi}$  は 2.3 MeV で  $\beta$  崩壊し、それ単体では背景事象とならない。一方その娘核である  $^{212}\text{Po}$  は半減期  $0.299 \mu\text{s}$  で 8.8 MeV の  $\alpha$  崩壊をする。この  $\alpha$  線は消光効果により 0.73 MeV になる。図 3.6 に表すように、 $^{212}\text{Bi}$ 、 $^{212}\text{Po}$  のパイルアップ事象は  $0\nu\beta\beta$  崩壊の背景事象となる。パイルアップ事象はダブルパルスフィッタ [5] と呼ばれる解析手法により除去されているが、崩壊の時間差が短い場合除去しきれない。KamLAND-Zen 800 では大きな問題となっていないが、 $^{232}\text{Th}$  濃度が高くなると除去しきれない割合が増えるため、背景事象となり得る。

### 3.3 KamLAND2-Zen

KamLAND-Zen 実験では先述の通り段階的に精度を上げているが、未だに  $0\nu2\beta$  崩壊は発見されていない。そこでさらなる改良を加えたものが KamLAND2-Zen 実験という名で計画されている。

バルーン素材を発光性のもにすることで  $^{214}\text{Bi}$  の背景事象低減、集光量を増加させることでエネルギー分解能を良くし、 $2\nu2\beta$  崩壊と  $0\nu2\beta$  崩壊の区別、また、粒子識別を行うことで長寿命不安定核の背景事象の低減を図っている。

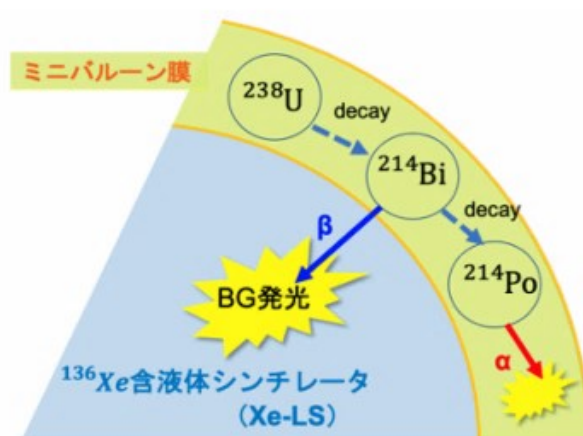
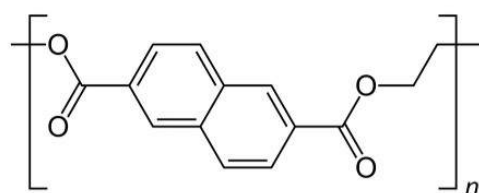
図 3.7  $^{214}\text{Bi} - ^{214}\text{Po}$  の遅延同時計測

図 3.8 PEN の構造式

### 3.3.1 シンチレーションバルーン PEN

KamLAND-Zen のバックグラウンドの一つに  $^{214}\text{Bi}$  の  $\beta$  崩壊がある。KamLAND2-Zen では発光性シンチレーションフィルムを用い、 $^{214}\text{Bi}$  の崩壊後の  $^{214}\text{Po}$  が放出する  $\alpha$  線を発光させることで遅延同時計測によって識別することを考えている (図 3.7)。そのシンチレーションバルーンの候補とされているのがポリエチレンナフタレート (Polyethylene Naohtalate, PEN) である。構造式を図 3.8 に表す。PEN フィルムを用いることで、バックグラウンドは 99.7% 除去できると推定されている。

### 3.3.2 大光量液体シンチレータ

現在採用されている液体シンチレータより発光量の大きいものに変更される予定である。現在有力となっている組成を表 3.3 に示す。溶媒としてリニアアルキルベンゼン (LAB) とプソイドクメン (PC) を用い、放射線により発光する試薬 (第一溶質) としてジオフェニルヘキサゾール (PPO)、その発光をさらに最高感度にシフトさせる試薬 (第二溶質) には 1,4-ビス (2 メチルスチリ

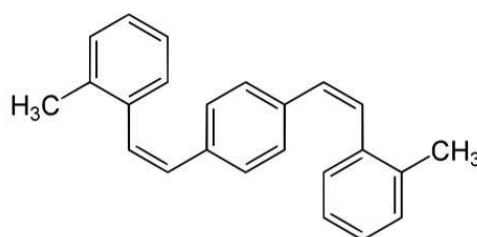


図 3.9 Bis-MSB の構造式

ル) ベンゼン (Bis-MSB) を用いている。Bis-MSB を用いることで先述した PEN による吸収を避けることができる (図 3.9)。この液体シンチレータを用いることによって、光収集量は 1.4 倍に増えることが期待されている [6]。

表 3.3 LAB LS の組成 [7]

物質名	分子式	密度	比率
リニアアルキルベンゼン (LAB)	$C_{21}H_{36}$	$0.87 \text{ g/cm}^3$	80%
プソイドクメン (PC)	$C_9H_{12}$	$0.875 \text{ g/cm}^3$	20%
ジオフェニルヘキサゾール (PPO)	$C_{15}H_{11}NO$	—	2.0 g/l
1,4-ビス (2 メチルスチリル) ベンゼン (Bis-MSB)	$C_{24}H_{22}$	—	5 mg/l
LAB-LS	-	$0.873 \text{ g/cm}^3$	-

### 3.3.3 集光ミラー

KamLAND-Zen 実験における PMT の被覆率は約 34 % である。KamLAND2-Zen では、PMT に集光ミラーを取り付けることで被覆率の上昇を図っている。先行研究ではまず、集光ミラーの入り口を円形であるとし、曲面はストリングメソッドを用いたウィンストンコーン型にすることが検討された。ウィンストンコーンの最大の特徴は反射率が 100 % の二次元空間の場合、有効半径内からの入射であれば最高一回の反射で光電面に 100 % 集光し、有効半径外からの入射は 100 % カットすることである。しかし、目標だった KamLAND-Zen 実験の 1.8 倍には到達しなかったため、入り口を多角形にする事が考えられた。これは入り口を多角形にすることで、集光ミラー間のデッドスペースを減少させることを狙ったためである。また、入り口の変更に伴い、曲面についても再考された。3 次の Bezier 曲線により多角形ミラーのシュミレーションを行い、最も集光率の高いミラーを選定した。設置位置はミラー同士が干渉しないよう隣り合う 2 つの PMT 中心の垂直二等分線を多角形の一辺としてひし形の内部を埋めつくすようにしている。集光ミラーの材質については第 4 章で言及するが、集光ミラーの導入によって光収集量が 2 倍程度向上する



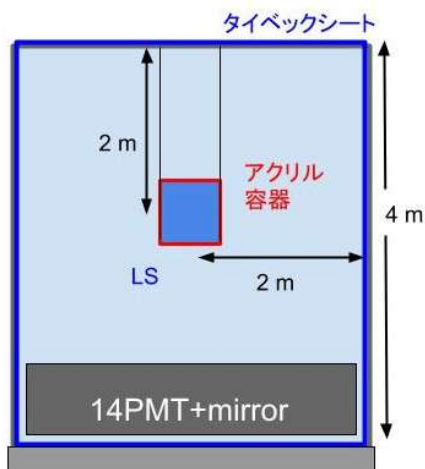


図 3.10 プロトタイプ検出器の概要図

ことが見込まれている。

### 3.3.4 高量子効率 PMT

量子効率とは、物質の中で光子または電子が他のエネルギーの光子または電子に変換される割合を示している。つまり、量子効率が高ければ高いほど検出効率が良くなる。現在、KamLAND 検出器に使用されている PMT の量子効率の最大値は 20 % 程度だが、KamLAND2-Zen で使用予定の PMT は 30 % である。また、17 インチ PMT を 20 インチ PMT に変更することで被覆率は 42 % となる。量子効率と被覆率の向上によって集光量が 1.9 倍程度になると見込まれている [8]。

### 3.3.5 プロトタイプ検出器

前述した改善案はそれぞれ独立して研究が進められており、最終的な集光量の評価は行われていない。そこで、実際にどの程度の性能が見込めるのかを確認するためにプロトタイプ検出器が製作された。また、KamLAND2-Zen で最も大きな背景事象となりうる  $^{232}\text{Th}$  濃度の推定も目的とした。プロトタイプ検出器は KamLAND と同様に神岡鉱山内に設置され、半径 2 m、高さ 4 m の円筒形である。図 3.10 に概要図を示す。

### タイベックシート

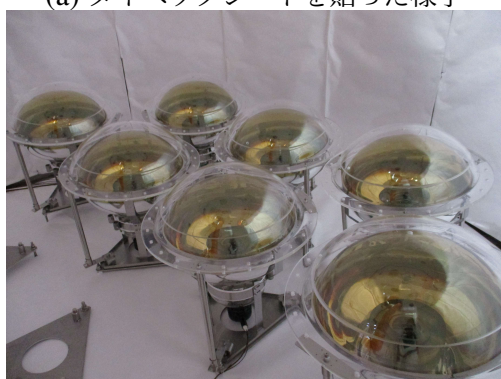
プロトタイプ検出器の内壁には液体シンチレータからの光をなるべく測定するためにタイベック (Tyvec) シートが 2 枚重ねで設置されている。タイベックは軽く、耐水性、通気性があり、様々な用途に使用されている。先行研究より [9] 今回は 1082D と呼ばれるタイベックシートを使用した。タイベックの反射率は 350 nm ~ 600 nm までで 90 % 以上あり、拡散反射だけでなく鏡面



(a) タイベックシートを貼った様子



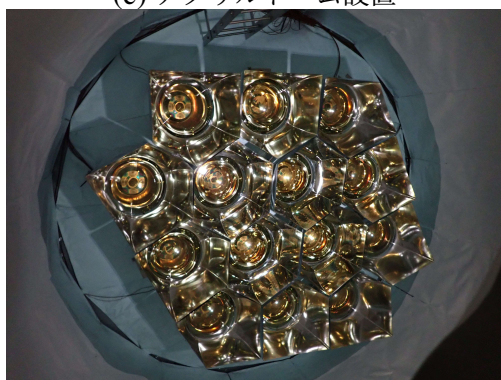
(b)PMT インストール途中



(c) アクリルドーム設置



(d) ミラーの設置



(e) 純水注入の様子

図 3.11 プロトタイプ検出器建設作業

反射成分もあることが知られている [10]。

## 20 インチ高量子効率 PMT

プロトタイプ検出器の PMT には KamLAND2-Zen で使用予定の浜松ホトニクス社製の R12860-03LXA と呼ばれるものが使われている。14 本の PMT が設置されており、台座は KamLAND 検出器球形タンクの PMT の配置と角度を再現している。

## 集光ミラー

プロトタイプ検出器に導入したのはアクリル基板にアルミニウムを蒸着し、アクリル系樹脂のトップコートを施したミラーである。このミラーは先行研究 [11] での最適化に基づき、14 本の PMT 全てに取り付けられた。

## 液体シンチレータ

プロトタイプ検出器に導入した液体シンチレータの詳細は第 5 章に記す。表 3.3 の組成だが、純水での液液抽出と窒素バブリングを行っている。

### 3.3.6 キャリブレーション

KamLAND2-Zen のシミュレーションで 5 倍の集光量が確認されているが、実際にプロトタイプ検出器でも同様の結果になるか確かめるためにキャリブレーションが行われた。

## 発光時間分布測定

プロトタイプ検出器では LED を用い、シンチレータ球を光らせることで測定を行った。シンチレータ球の組成は表 3.4 のようになっており、性能は表 3.5 である。ここでは LED の光量を絞ることで 1 p.e. での光子計数が可能となっている。

表 3.4 シンチレーション球の組成

物質名	比率 [wt%]
テトラフェニルブタジエン (TPB)	1.5
1,4 ビス (5 フェニル 2 オキサゾール) ベンゼン (POPOP)	0.02
酸化マグネシウム (MgO)	0.3

発光時間分布は主にシミュレーションにおける光学パラメータのチューニングに利用した。

表 3.5 LED 光源とシンチレーション球の性能

発光時間幅 (LED 光源)	FWHM $\sim$ 4[ns]
発光時定数 (実測値)	$\tau_1=2.3$ [ns] $\tau_2=14$ [ns] $\tau_3 = 2.0 \times 10^2$ [ns]
発光波長スペクトル	$\sim$ 450[nm]
発光等方性	$\pm$ 5[%]

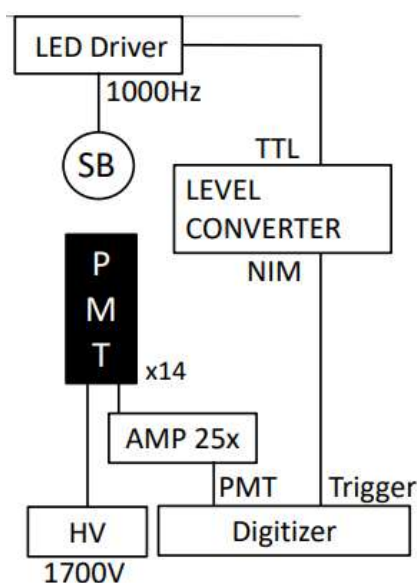


図 3.12 発光時間分布測定と 1 p.e. 測定の回路

## 1 p.e. ゲイン

測定した ADC 値が何光子分かに変換するために 1 p.e. ゲイン測定を行った。測定回路は発光時間分布測定と同様に図 3.12 である。トリガー信号を LED の発光タイミングと同期したパルス信号とし、PMT 信号を変換した。

## 第 4 章

# 集光ミラー素材候補の性能評価

前章で述べた通り、KamLAND2-Zen 実験では集光ミラーの導入が検討されている。検出器の被覆率を改善することで集光量を向上させることが目的である。集光ミラーの形状については先行研究 [11] が行われているが、材質についての検討は十分行われているとは言えない。本研究では、様々なミラーの素材について反射率と長期安定性を確認し、KamLAND2-Zen に導入する集光ミラーの材質を決定することを目的としている。ここではまず、プロトタイプ検出器へ導入するミラー材質の選定を行った。

ミラーサンプルは図 4.1 のような構造になっている。本研究では A 社と B 社に依頼し、全 10 種類のミラーサンプルを用意した (表 4.1)。それぞれのサンプルは図 4.1 のようにトップコート、金属蒸着、アンダーコート、基板という順番に重なっている。A ~ D, F ~ J は A 社製であり、E は B 社製である。また、C サンプルの基板についてはアクリルの作成方法が他のミラーと異なる。

### 4.1 反射率測定

まずそれぞれのミラーサンプルについて空気中での反射率を測定した。KamLAND2-Zen で用いる集光ミラーの反射率は 85 % を目標としているため、プロトタイプ検出器の目標も 85 % とした。

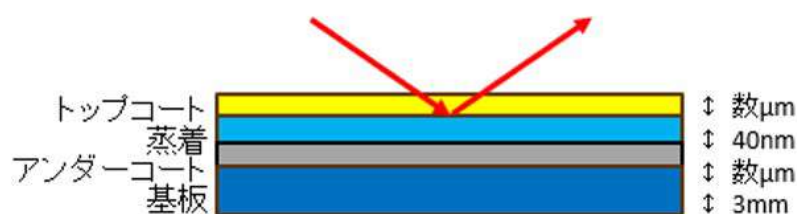


図 4.1 ミラーサンプル概略図

表 4.1 今回評価を行った 10 種のミラーサンプル

サンプル名	アンダーコート	トップコート	基板	蒸着
A	なし	アクリル系樹脂	アクリル	Al
B	なし	SiO <sub>2</sub>	アクリル	Al
C	通常樹脂	アクリル系樹脂	アクリル	Al
D	通常樹脂	アクリル系樹脂	アクリル	Al
E	なし	SiO <sub>2</sub>	アクリル	Al
F	なし	ハイブリット樹脂	アクリル	Al
G	なし	熱乾式樹脂	アクリル	Al
H	通常樹脂	ハイブリット樹脂	アクリル	Al
I	通常樹脂	熱乾式樹脂	アクリル	Al
J	UV	UV 硬化型樹脂	アクリル	Al

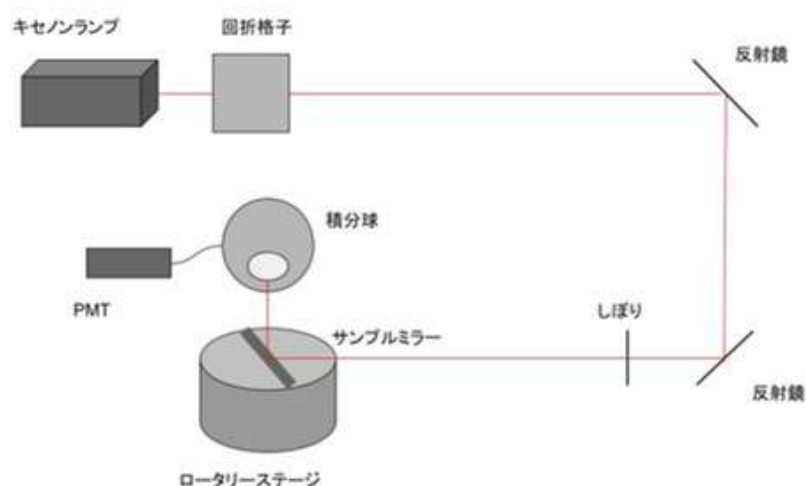


図 4.2 反射率測定のための光学系

#### 4.1.1 反射率測定の設定アップ

今回用いた光学系を図 4.2 に示す。回折格子 (島津製 SPG-120UV) を通したキセノンランプからの光をミラーサンプルに反射させてから積分球に入射させ、PMT の出力をアンプ (島津製 AT-120AP) で 10 倍にしたものを測定した。また、反射率の角度依存性について確かめるため、ミラーサンプルをロータリーステージに固定し、入射角が 15,30,45,60,75 度になるように変化した。各サンプル、角度で 300 nm ~ 600 nm まで波長を変化させた。ただここでは第 3 章で述べた発光性フィルム PEN の透過波長であり、液体シンチレータの発光波長である 400 nm ~ 500 nm に着目して評価する (図 4.3)。

積分球に直接入射させたときの信号をミラーサンプルの測定前後に各 5 回、全 10 回行った (図

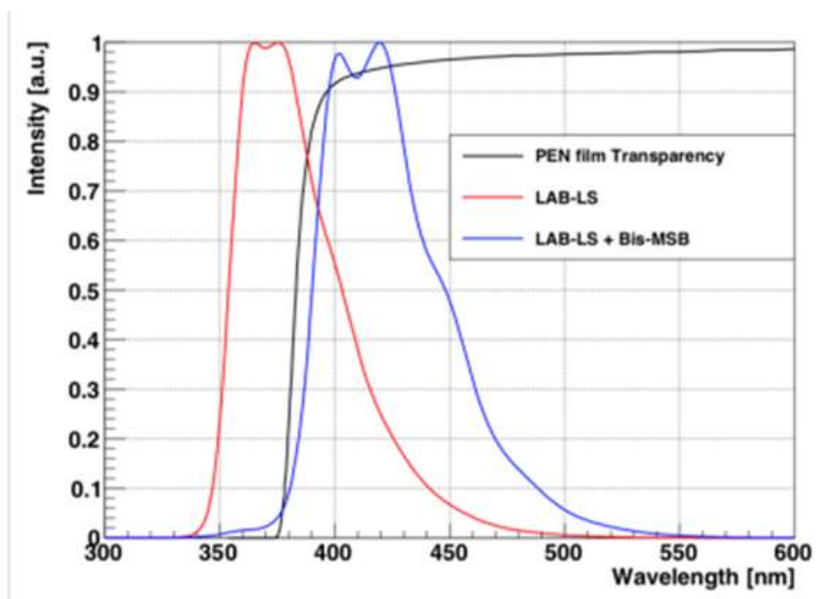


図 4.3 液体シンチレータの発光波長

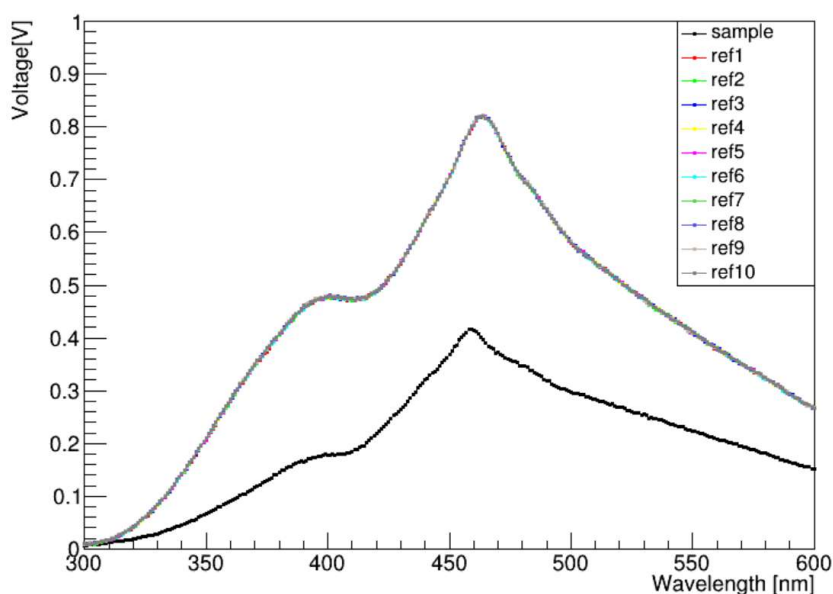


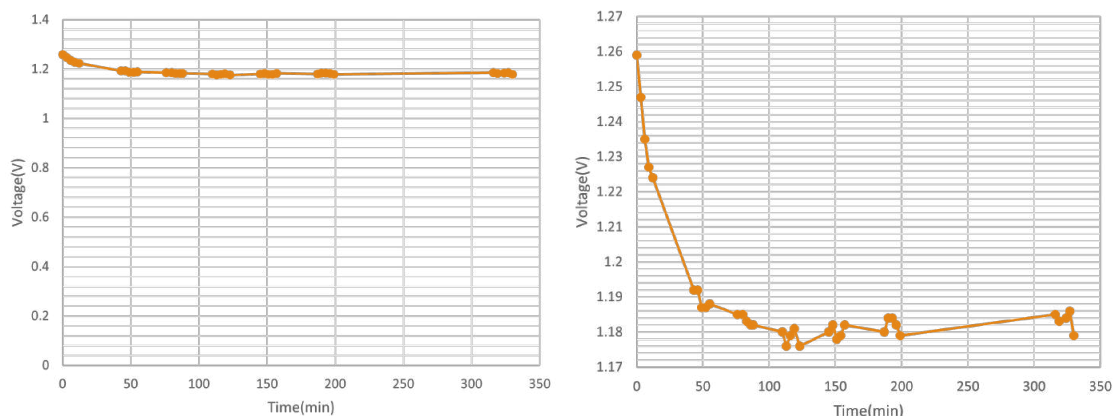
図 4.4 測定データの例

4.4)。その平均値をリファレンスとして以下のように反射率を定義した。

$$\text{反射率 [\%]} = \frac{\text{サンプルミラーを入れた測定値 [V]}}{\text{リファレンスの値 [V]}} \times 100 \quad (4.1)$$

#### 4.1.2 反射率測定の誤差

上記の反射率測定にはキセノンランプの不定性が含まれる。今回は 400 nm での電圧の時間安定性を計測した。図 4.5 より測定開始から 50 分経過後から電圧が安定することがわかった。よっ



(a) キセノンランプ安定性

(b) キセノンランプ安定性 (1.2 V 付近)

図 4.5 キセノンランプの時間安定性

て電源をつけてから 50 分経過後に測定を開始することで反射率測定の誤差を 0.92 % とした。

### 4.1.3 反射率測定の結果

各入射角における反射率測定の結果を図 4.6 に示す。また、400 nm、入射角 45 度のときの反射率を表 4.2 にまとめた。この結果から、400 nm、45 度の点で反射率が 80 % を超えた A,E のミラーサンプルを候補とした。

表 4.2 反射率測定結果 (400 nm,45 度)

サンプル名	アンダーコート	トップコート	反射率 [%]
A	なし	アクリル系樹脂	81.6
B	なし	SiO <sub>2</sub>	53.9
C	通常樹脂	アクリル系樹脂	71.0
D	通常樹脂	アクリル系樹脂	77.3
E	なし	SiO <sub>2</sub>	91.3
F	なし	ハイブリット樹脂	71.3
G	なし	熱乾式樹脂	72.2
H	通常樹脂	ハイブリット樹脂	73.0
I	通常樹脂	熱乾式樹脂	74.1
J	UV	UV 硬化型樹脂	69.6

## 4.2 加速劣化試験

集光ミラーは、KamLAND2-Zen 実験ではバッファオイル内で約 5 年、プロトタイプ検出器で半年以上使用する。空気中の反射率測定のみでは、液体に対する耐性はわからない。そこで、前



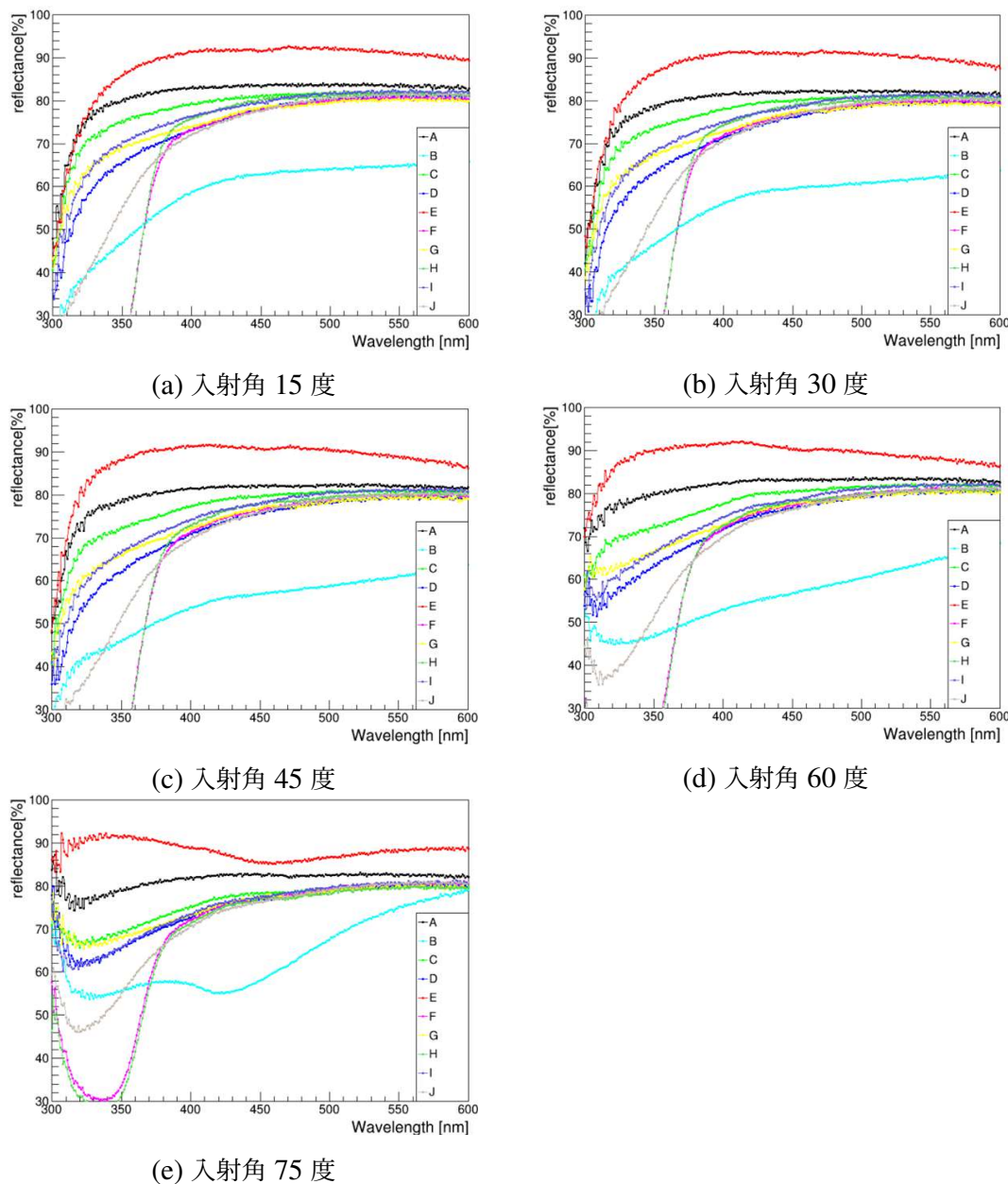


図 4.6 プロトタイプ検出器へインストールする候補となったミラーの反射率

節で選定したサンプルについてそれぞれ水、バッファオイル内での加速劣化試験を実施した。

#### 4.2.1 加速劣化試験の方法

加速劣化試験とは実際の温度より高温下での劣化を見て実温度での劣化を検証する試験である。今回の劣化試験では 41 °C の恒温槽内で約 20 日間保管した。Arrhenius の式と経験則より温度が 10 °C 上昇するごとに劣化速度が二倍になることが知られている。神岡坑内は一年を通して 11 °C 程度のため、今回の加速劣化試験では 8 倍の速度で劣化すると考えられる。つまり今回の加速劣化試験は神岡坑内で約半年間保管したときと同等の結果が得られる条件である。サンプルの

保管方法は図 4.7 に示す。200 mL バイアルにバッファオイルおよび水を 150 mL 入れ、ミラーサンプルを浸した。ここでは酸素による劣化を防ぐため、バッファオイル及び水は窒素で満たし、バイアルを酸素吸着剤の入った密閉便に入れた。そしてその密閉瓶ごと恒温槽で保管した。評価項目は、「目視」「ミラーの反射率」「液体の透過率」の3つである。

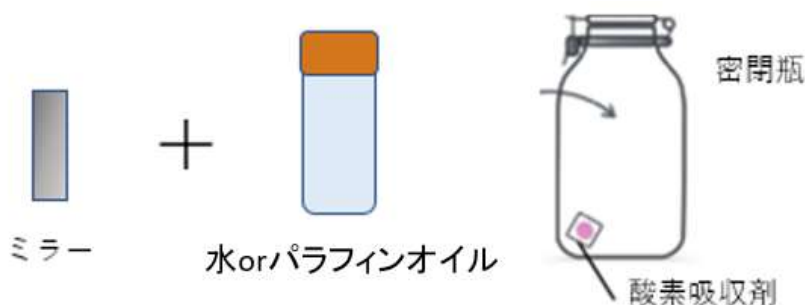


図 4.7 サンプルの保管方法

#### 4.2.2 透過率測定

加速劣化試験ではミラー自体への影響とともに、液体への影響も確認しなければならない。ミラーに使われている物質が液体に溶け出す可能性があり、その場合透過率が低下することが考えられる。測定には分光光度計で図 4.8 のように 300 nm ~ 600 nm の光を 1 cm と 10 cm の石英セルに入れたサンプルに入射させ、透過した光を PMT で検出する。今回の測定では透過率がほぼ 100 % であるシクロヘキサンを baseline とし、透過率の絶対値を以下のように求めた。

$$\text{透過率 [\%]} = \frac{I_{10\text{cm}}(\text{sample})/I_{10\text{cm}}(\text{baseline})}{I_{1\text{cm}}(\text{sample})/I_{1\text{cm}}(\text{baseline})} \times 100 \quad (4.2)$$

また、一つのサンプルに対して 3 回測定を行い、平均値を取った。ここでの測定誤差は 0.3 % であった。KamLAND2-Zen に換算した場合 10 % 以下になることを目標としている。

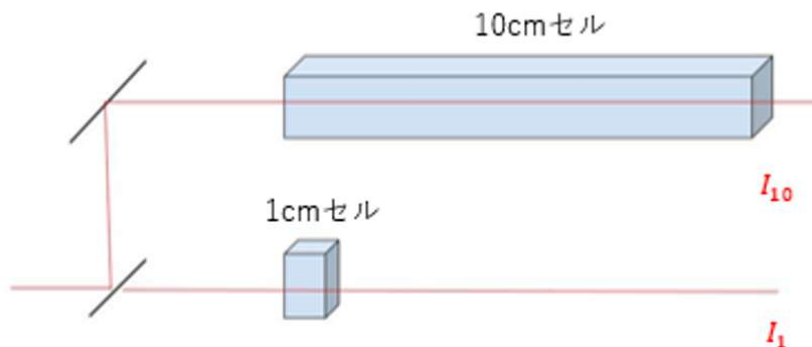


図 4.8 透過率測定の概要図

### 4.2.3 加速劣化試験の結果

まず第一に、目視では水に漬けた A、バッファオイルに付けた E のミラーサンプルに剥がれが見られた (図 4.9)。各入射角における反射率測定の結果を図 4.10 に示す。A については水に漬けたミラーサンプルの反射率が低下し、E はバッファオイルに漬けたミラーサンプルの反射率が低下した。N については誤差の範囲で一致した。また、9 cm の透過率測定の結果を図 4.11 に示した。ここでは A を漬けたバッファオイルで低下が見られた。一方、物質の溶け出しが透過率減少の原因と仮定すると、同じ体積の液体に対するミラーの面積、周長の割合である S/V 比、L/V 比が高いほど透過率の減少率が大きくなると考えられる。各検出器とバイアル内での S/V 比と L/V 比を表 4.3 に示す。この表より、バイアル内と各検出器との差は L/V 比より S/V 比のほうが大きいため、S/V 比のみを考慮する。バイアル内の S/V 比は KamLAND2-Zen 実験の 5.6 倍であるため、透過率の減少率も 5.6 倍になっていると言える。

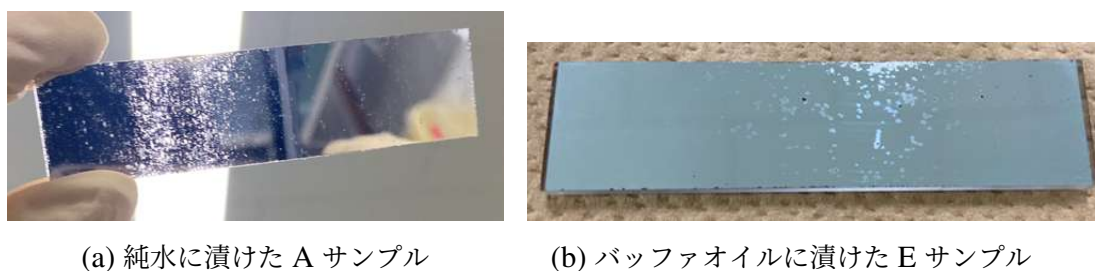


図 4.9 加速劣化試験後 目視での変化

表 4.3 各検出器の S/V 比

	S/V 比 [/m]	L/V 比 [/m <sup>2</sup> ]
バイアル内	10.7	133
KamLAND2-Zen	1.9	2.4
プロトタイプ検出器	2.0	2.5

また、今回の測定では 9 cm における透過率だが、実際の検出器規模の透過率は減少率が大きくなるのが予想される。したがって透過率の減少を評価するには、今回の測定で 9 cm における透過率を 2 m に換算する必要がある。測定した 9 cm における透過率を  $t_9$ 、2 m における透過率を  $T_2$  とすると、

$$t_9 = t_0 + \delta t \quad (4.3)$$

$$T_2 = T_0 + \delta T \quad (4.4)$$

と書くことができる。ここで、 $t_0$ 、 $T_0$  は透過率の絶対値であり、 $\delta t$  と  $\delta T$  は誤差である。それ

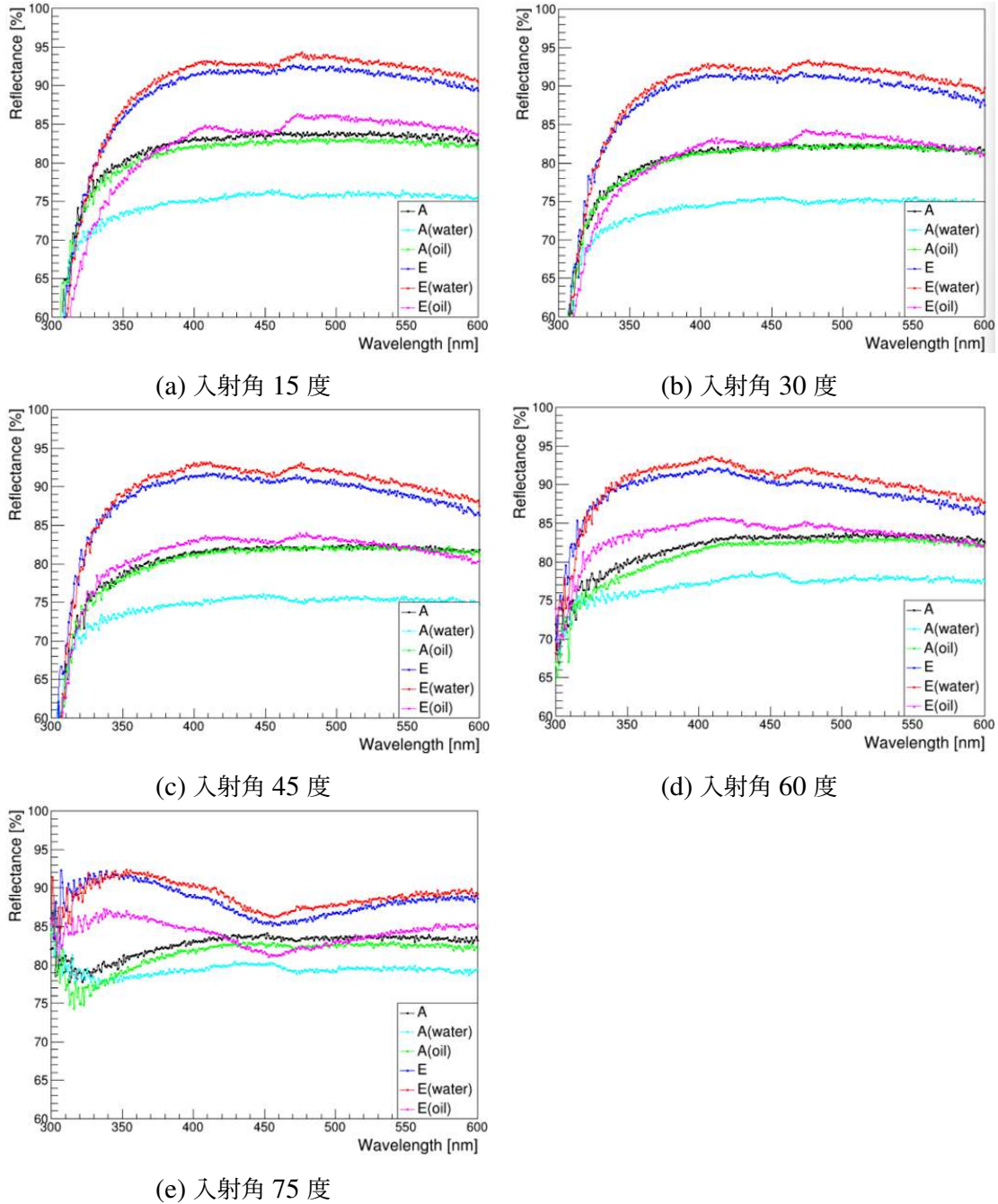


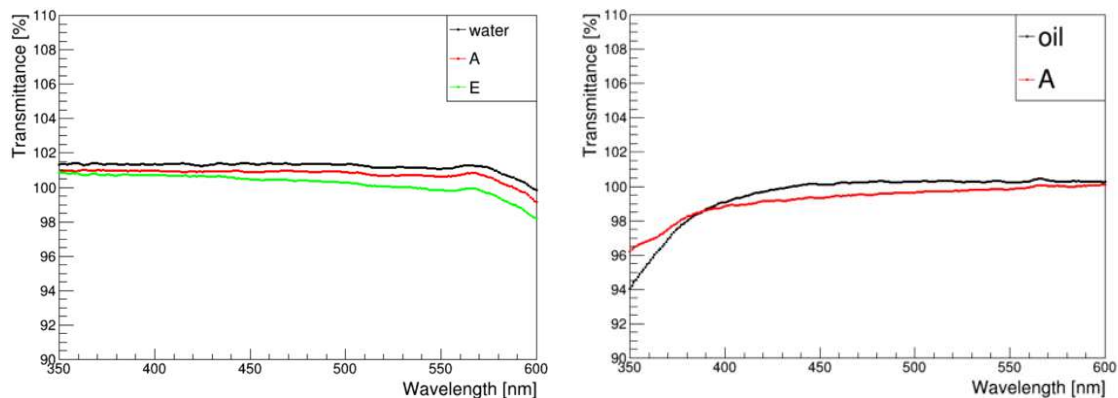
図 4.10 加速劣化試験後 反射率測定結果

ぞれの関係は

$$T_0 = t_0^{\frac{200}{9}} \quad (4.5)$$

$$\delta T = \frac{200}{9} \times \frac{T_0}{t_0} \times \delta t \quad (4.6)$$

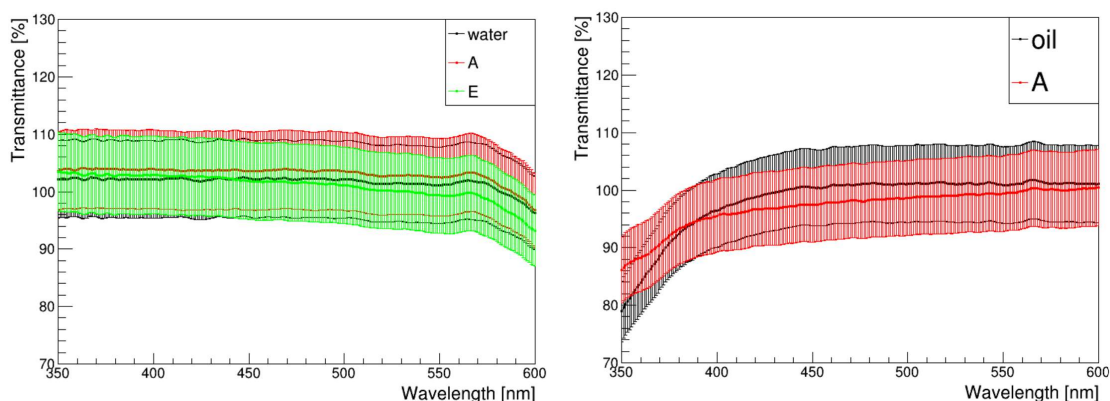
と表せる。この関係と S/V 比を考慮すると、2 m における透過率は図 4.12 のようにかかる。この結果から 400 nm での透過率は純水では低下が見られず、バッファオイルでは約 2 % ほどの低



(a) 純水の透過率。黒はミラー無し、赤は A、緑は E を漬けたもの。  
(b) バッファオイルの透過率。黒はミラー無し、赤は A を漬けたもの。

図 4.11 加速劣化試験後の液体の透過率 (9 cm)

下が見られた。KamLAND2-Zen での目標値は 10 % 低減であるため、問題はないとした。透過率減少の原因はトップコートやアンダーコートの溶け出しなどが考えられる。



(a) サンプルを漬けた純水の透過率。黒はミラー無し、赤は A、緑は E を漬けたもの。  
(b) サンプルを漬けたバッファオイルの透過率。黒はミラー無し、赤は A を漬けたもの。

図 4.12 加速劣化試験後の液体の透過率 (2 m)

しかし、A 社側の 20 °C、3 ヶ月間の純水加速劣化試験では A のミラーに剥がれが見られなかった。したがって今回の加速劣化試験で剥がれが見られたのは、高温にしたことが原因であると考えた。神岡坑内は一年中 10 °C 程度であることから、温度変化による劣化は実際の検出器では生じない。また、20 インチ PMT 用の多角形ミラー作成の準備が整っているのが A 社であることや、B 社の E のミラーではコストが掛かりすぎることを考慮し、プロトタイプ検出器にインストールするミラーを A サンプルと決定した。

### 4.3 プロトタイプ検出器への多角形ミラーインストール

前述の通り、反射率測定と加速劣化試験を踏まえて A のアクリル系樹脂被膜のミラーをプロトタイプ検出器にインストールした。プロトタイプ検出器にミラーをインストールすることで、集光性能と安定性を評価し、KamLAND2-Zen での不定性減少を目指す。プロトタイプ検出器にインストールするミラーは図 4.13 のようにレジンを固めたあと、アクリルの形成をし、アルミ蒸着とトップコートを施した。



(a) レジンを固める



(b) アクリルの形成



(c) アルミニウム蒸着とトップコート

図 4.13 多角形ミラーの製作

PMT14 本に対してそれぞれアクリルドームをネジで固定し、ミラーをアクリルドームの溝に合わせて設置した図 4.14。図 4.15 は先行研究 [11] でシミュレーションされた形である。0 番から設置し始め、4.15 の形になるように隣り合うミラーを順番に設置していった。プロトタイプ検出器の建設作業では目視で方向を合わせることが多くあったが、予定よりも長い時間がかかった。そのため、KamLAND2-Zen 実験で検出器を建設する際は角度や長さなどを正確に計測し、設置する必要があると感じた。



図 4.14 ミラーインストール中の様子。アクリルドームには丸い溝が掘ってあり、その溝に合わせてミラー下部を合わせて設置した。

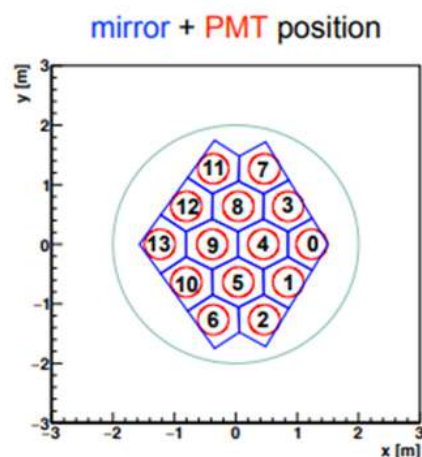


図 4.15 ミラーの設置図。これを元にインストールを行った。

#### 4.3.1 ミラー設置による光量増加の評価

プロトタイプ検出器建設時、ミラーを設置する前後でシンチレーション球の発光による光量評価を行った(図 4.16)。外周の 10 個の PMT は直接光の入射角が浅く、タイベックシートに近い分性能評価ができないため、中央の 3,5,8,9 番のミラーのみで光量増加を計測した結果、図 4.17 のようになった。ミラーインストール後の光量をインストール前の光量で割った結果を縦軸とした。

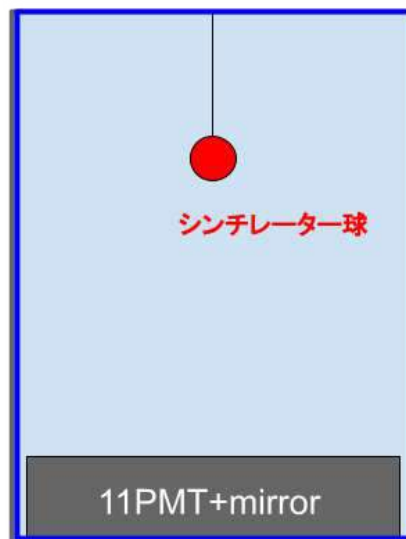
この図より、すべてのミラーで 1.6 倍以上になった。4 番と 8 番のミラーはシミュレーションと計測結果に差が見られており、底面の歪みの影響によってミラーが外側に傾いてしまったことや、シミュレーションでは反射率が 85 % 相当になっているが今回インストールしたミラーの反射率が 81 % であったことが考えられるが、明確な原因は検出器解体後の検証となる。

## 4.4 KamLAND2-Zen に向けたミラー素材評価

プロトタイプ検出器にインストールするミラーを決定した後も KamLAND2-Zen 実験のために様々なミラーで検証を行った(表 4.4)。K,L のミラーは蒸着を Ag に変えることによる反射率の増加を図っている。また、K ~ N は図 4.1 と同様の構造だが、O は基板を通してから反射するミラーであり(図 4.18)、蒸着面が滑らかで乱反射の寄与が減る可能性がある。これらのミラーはコーティングがないため、設置段階で傷が付く可能性が高く実用には適していないが、今後ミラーを選定する上で前述した違いが反射率にどのように影響するかを確かめるためにこれらのサンプルの反射率を測定した。



(a) シンチレーション球



タイベックシート

(b) 光量評価時のセッティング

図 4.16 シンチレーション球を用いたミラー光量増加評価のセットアップ

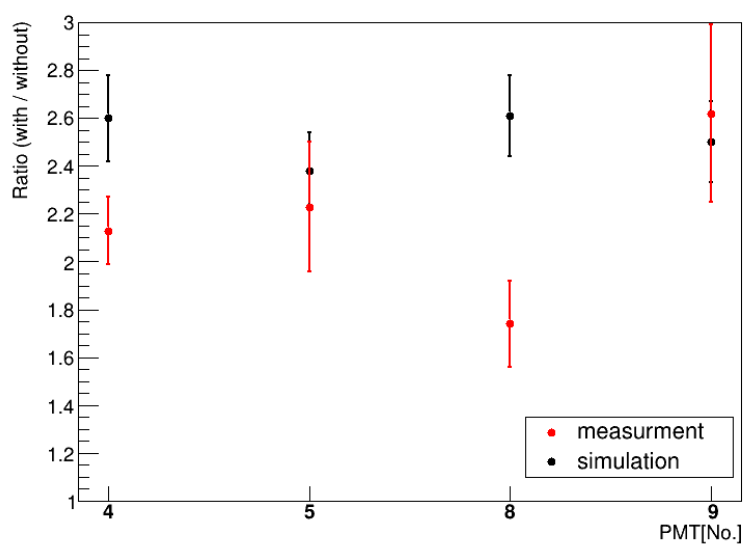
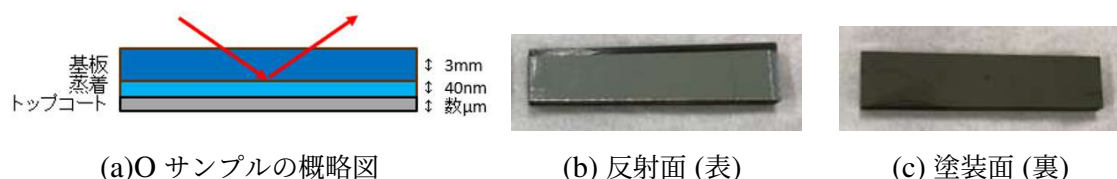


図 4.17 ミラー有無による光量増加の評価



表 4.4 KamLAND2-Zen に向けて検証を行ったミラー

サンプル名	アンダーコート	トップコート	基板	蒸着
K	なし	なし	ABS	Ag
L	なし	なし	ABS	Al
M	なし	なし	アクリル	Ag
N	なし	なし	アクリル	Al
O	なし	グレイ塗装	アクリル	Al



(a) O サンプルの概略図

(b) 反射面 (表)

(c) 塗装面 (裏)

図 4.18 O サンプル

表 4.5 KamLAND2-Zen に向けて検証を行ったミラー

	ビームサイズ		絞りとサンプルの距離 [cm]	反射率 [%]
	縦 [mm]	横 [mm]		
変更前	3	5	26	79.31
変更後	1	1	21	82.46

#### 4.4.1 O サンプルのセッティングによる誤差

反射率を測定する上で、O のサンプルには入射角依存性があることがわかった。その原因として積分球の中にビームが全て入射していないことだと考えた。そこで、絞りを小さくし、表 4.5、図 4.19 のように絞りとサンプルの距離を近くした上で、ビームが積分球の中心に入っているか確認を行った。

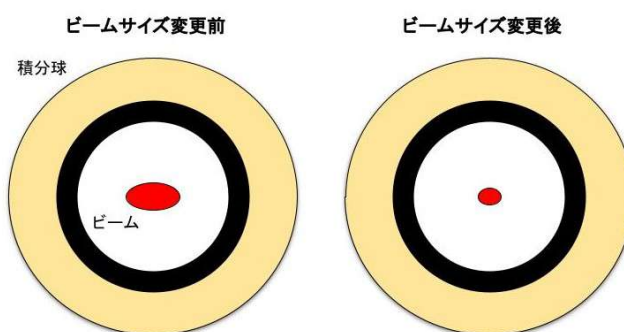


図 4.19 ビームサイズの変更

セッティングを変えた場合の反射率測定の結果は図 4.20 である。この図を見ると O サンプル

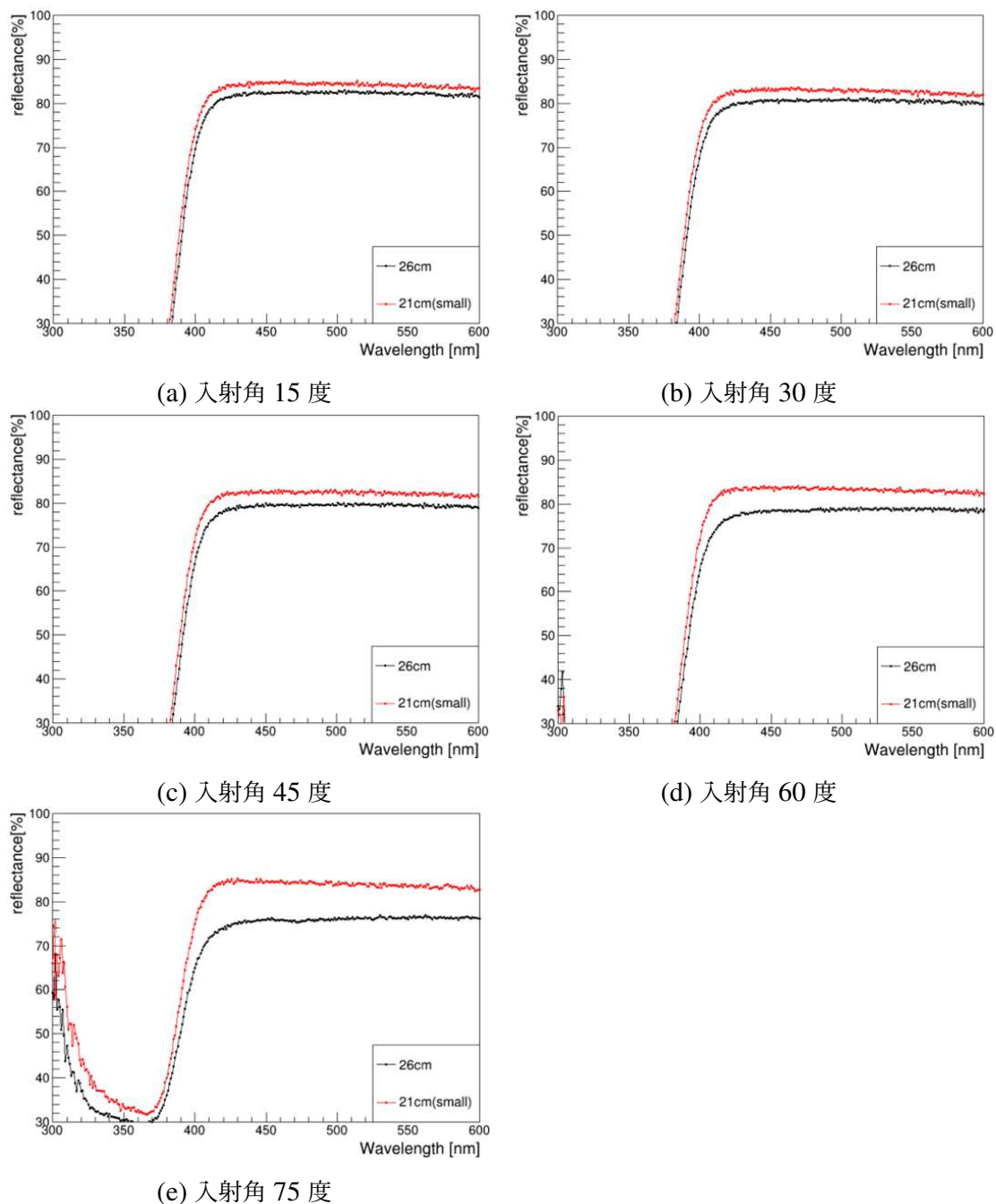


図 4.20 O サンプル セッティングによる誤差

のミラーは 410 nm 付近まで反射率が低いことがわかる。これは、基板に紫外線吸収剤が使われており、紫外線領域の光をミラーが吸収してしまうためであるが、KamLAND2-Zen 実験の際には紫外線透過アクリルを用いるため問題ない。そこで今回の測定では O のミラーに限り 430 nm の反射率に注目した。

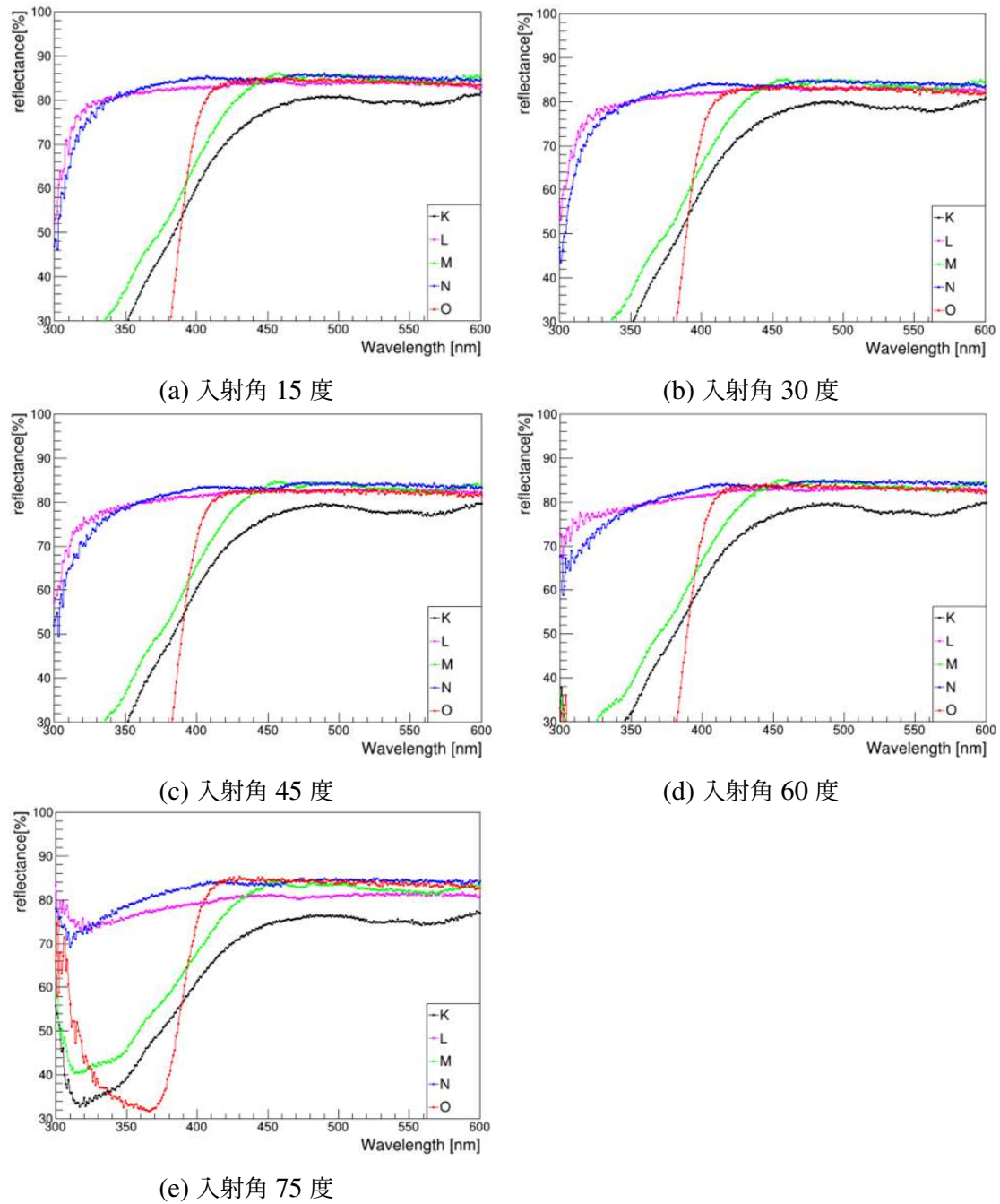


図 4.21 K から O のミラー 反射率測定

#### 4.4.2 反射率の評価

新たに検証した K~O のミラーについても反射率を測定した。今回の誤差は 2.2 % だった。反射率測定の結果は図 4.21 のようになった。

K と L,M と N を比較すると、蒸着は Al にしたほうが反射率が良いことがわかる。ただ、M と N を比較すると 450 nm より長波長側では反射率は誤差の範囲で一致している。K のミラーにつ

表 4.6 K から O サンプルの反射率

サンプル名	アンダーコート	トップコート	基板	蒸着	反射率 [%]
K	なし	なし	ABS	Ag	60.4
L	なし	なし	ABS	Al	81.2
M	なし	なし	アクリル	Ag	65.6
N	なし	なし	アクリル	Al	83.0
O	なし	グレイ塗装	アクリル	Al	82.5

いても 450 nm より長波長側で反射率がほぼ一定となっていることがわかる。液体シンチレータの発光領域は 400 nm ~ 500 nm 付近であるため、基板が Ag のミラーは適していないことがわかる。Al や Ag の素材自体の反射率よりも今回測定した反射率が低くなったのは、測定中に傷がついた可能性があることが考えられる。一方、K と M, L と N の結果を比較すると、基板は ABS よりアクリルであるほうが反射率が高くなった。また、N と O のミラーを比較すると誤差の範囲で一致した。これより、金属蒸着の向きは反射率に影響しないことがわかった。

## 第 5 章

# 液体シンチレータの純化

先行研究 [7] より、プロトタイプ検出器にインストールする液体シンチレータは表 5.1 のような組成とした。

表 5.1 LAB LS の組成

物質名	分子式	密度	比率
リニアアルキルベンゼン (台湾製)	$C_{21}H_{36}$	0.87 g/cm <sup>3</sup>	80%
プソイドクメン	$C_9H_{12}$	0.875 g/cm <sup>3</sup>	20%
ジオフェニルヘキサゾール	$C_{15}H_{11}NO$	—	2.0 g/l
1,4-ビス (2 メチルスチリル) ベンゼン	$C_{24}H_{22}$	—	5 mg/l
LAB-LS	-	0.873 g/cm <sup>3</sup>	-

プロトタイプ検出器には 30 L の液体シンチレータを使用した。

### 5.1 性能評価

先行研究 [12] より、表 5.2 のように Bis-MSB を入れることで <sup>232</sup>Th の濃度が高くなってしまふことがわかっており、純化が必要とされている。KamLAND では純化方法として液液抽出、蒸留、ろ過を行っているが、温度変化により Bis-MSB が変質する可能性があることから蒸留は不適切とし、LAB-LS には純水での液液抽出とろ過を行うこととした。液液抽出後、100 nm のメッシュフィルターを通すことでろ過を行う。しかし、液液抽出を行うことで液体シンチレータの含水量が増え、窒素バブリング体積が先行研究 [13] より多く必要になったり、発光性能が低下したりする可能性があった。この節ではそれらの検証の結果について述べる。

#### 5.1.1 液液抽出

プロトタイプ検出器の純化方法としては、常温常圧で実施でき、液体シンチレータを劣化させる可能性が低いことや、温度変化により Bis-MSB が変質する可能性があることから、液液抽出を

表 5.2  $^{232}\text{Th}$  濃度

	$^{232}\text{Th}$ 濃度 [g/g]
液体シンチレータ (Bis-MSB 由来)	$2 \times 10^{-15}$
プロトタイプ検出器の感度	$\sim 10^{-15}$
反ニュートリノ観測の要求値	$< 10^{-14}$
$0\nu 2\beta$ 崩壊探索の要求値	$< 5 \times 10^{-16}$

選定した。液液抽出は KamLAND でも用いられている純化方法であり (図 5.1)、水分子の極性を利用して液体シンチレータ層から水層に  $^{232}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$  を移す方法である (図 5.2)。本研究では仙台にあるクラス 100 相当のクリーンルーム内で純化作業を行った。

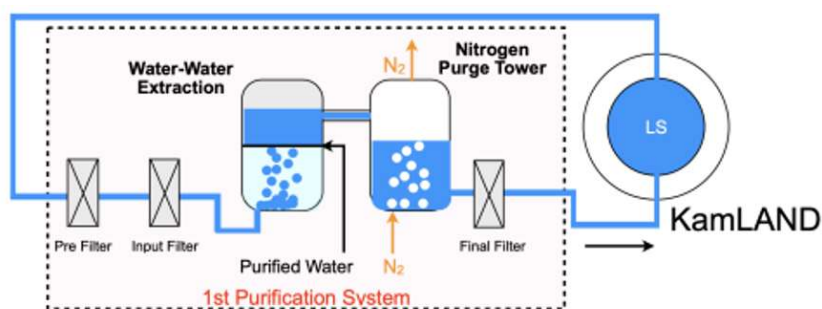


図 5.1 KamLAND で使用されている液液抽出



図 5.2 液液抽出の方法

### 5.1.2 窒素バブリング

先行研究 [13] より、液体シンチレータ 100 mL に対して、流量 550 mL の窒素で 3 分間置換することで発光量が飽和することが知られていた。しかし、液体シンチレータの含水量が増えたことで飽和させるためには更にたくさんの窒素が必要な可能性があった。そこで、流量は 550 mL/分のまま、一分ずつ窒素バブリング時間を伸ばしていき、飽和するところを探した。発光量測定の設定は図 5.3 である。 $\gamma$  線のコンプトン散乱を利用した後方散乱測定であり、今回の測定では  $^{137}\text{Cs}$  の崩壊の 662 keV の  $\gamma$  線を使用した。477 keV の反跳電子の発光を液体シンチレータで測定し、反跳後の  $\gamma$  線を NaI シンチレータで測定する。これらを遅延同時計測した。この発光量測定によって生じる誤差は約 1.6% だとわかっている [14]。

発光量測定の結果は図 5.5 のようになり、ガウス関数でフィッティングを行うことで発光量の値を出している。

液液抽出をしたサンプル、していないサンプルそれぞれに対して窒素バブリング時間を 1 分ずつ伸ばしていき、発光量の変化をプロットしたグラフが図 5.6 である。この図から、バブリング時間を 5 分以上にした場合、発光量が飽和することがわかった。また、5 分以上バブリングを行えば液液抽出の有無による発光量の差もないことがわかった。このことから液液抽出を行った液

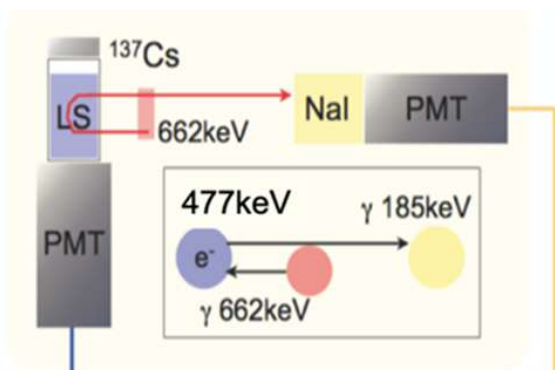


図 5.3 発光量測定の概要図



(a) バブリングの様子



(b) バブラー

図 5.4 窒素バブリングの概要図

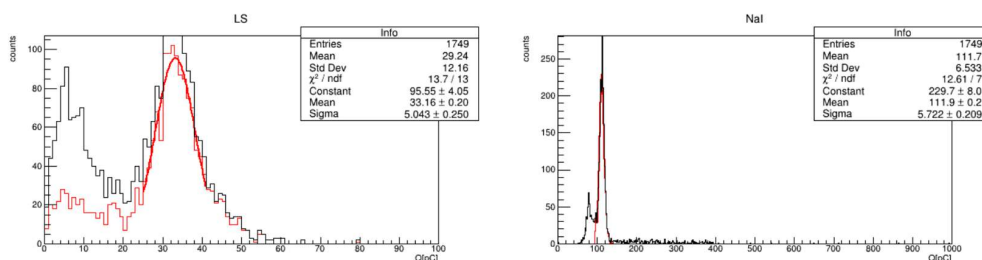


図 5.5 発光量測定の結果。液液抽出なし、窒素バブリング 1 分のもの。左図は LS 側であり、黒線は全イベント、赤線は NaI 側のイベントカットによるもの。右図は NaI 側であり、黒線は全イベント、赤線は反跳電子のイベントピーク。

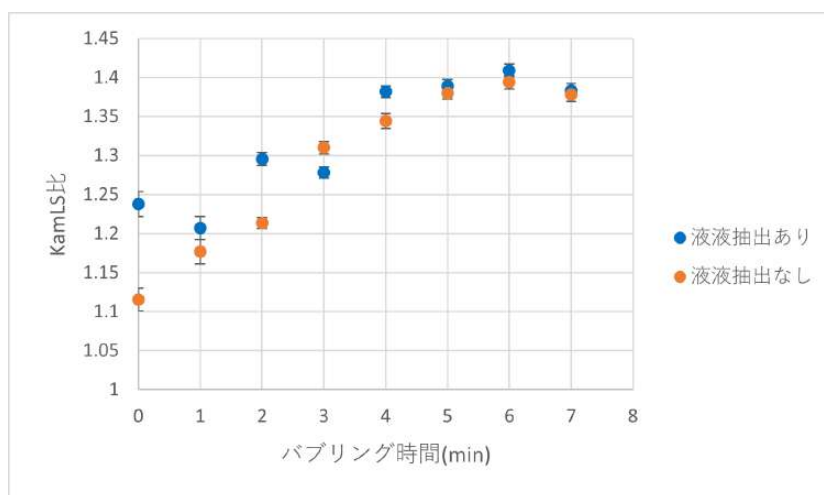


図 5.6 窒素バブリング時間と発光量

体シンチレータについては、窒素バブリング体積は液体シンチレータ体積の 25 倍とすべきだとわかった。

### 5.1.3 発光スペクトル測定

発光性能評価の一つとして発光スペクトル測定を行った。蛍光光度計 F-2700(日立ハイテクサイエンス製)を用い、図 5.7 のようにキセノンランプにより 300 nm ~ 600 nm までの光を液体シンチレータに当て、発光波長の強度を計測した。ここでも、液体シンチレータ中に含まれる酸素由来の消光効果をなくすために窒素バブリングを 5 分行った。

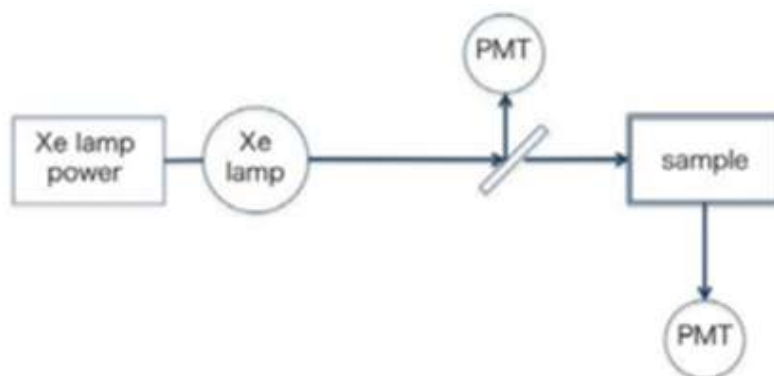


図 5.7 発光スペクトル測定の概要図

結果は図 5.8 のようになった。この図は面積で規格化されている。黒が液液抽出なし、赤が液液抽出ありのサンプルであるが、一致していることがわかる。つまり、これらの結果から 5 分以上窒素バブリングしたものについては液液抽出による発光性能の低下は見られないといえる。

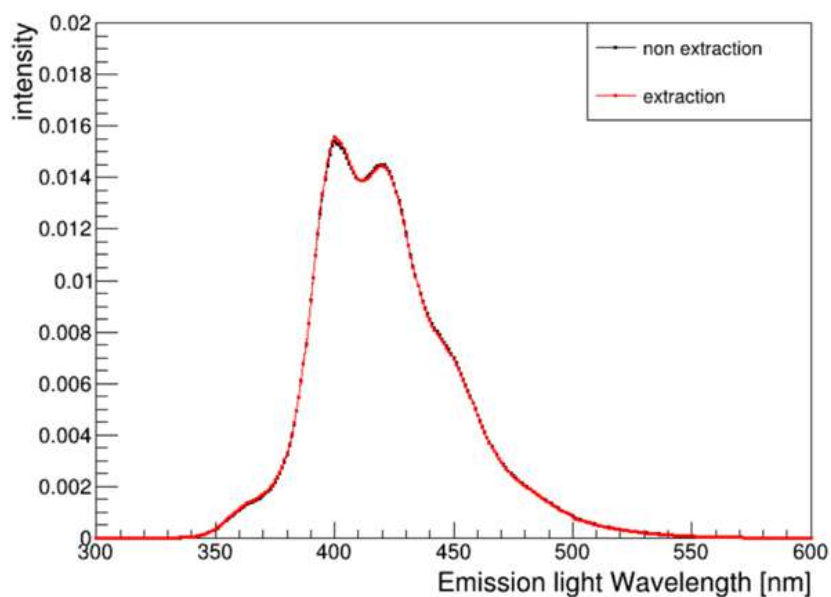


図 5.8 液液抽出有無による発光スペクトルの変化





図 5.9 攪拌の様子



図 5.10 ステンレス容器

## 5.2 30 L 液体シンチレータ

プロトタイプ検出器にはアクリル容器に入れた液体シンチレータをインストールした。作成は仙台で行い、アクリル容器に入れた状態で神岡に運搬した。

### 5.2.1 液体シンチレータ作成

プロトタイプ検出器へインストールする液体シンチレータは 30 L 分作成した。作成は以下の順番で行った。

#### 1. 洗浄

使用する容器を PC で洗浄した。

#### 2. 10 倍濃縮液体シンチレータ

一度に 30 L 分作成せず、少量の PC に PPO と Bis-MSB を溶かすことで効率化を測った。これは LAB に PPO と Bis-MSB が溶けにくい、PC には溶けやすい性質を利用したためである。攪拌機で攪拌可能なビーカーの大きさが 2 L だったため、PC を 1.5 L ずつ 2 つに分けて 10 倍濃縮液体シンチレータを作成した。

- PC 1.5 L , PPO 29.996 g , Bis-MSB 74.7 mg
- PC 1.5 L , PPO 30.0255 g , Bis-MSB 75.0 mg

の組成で作成し、図 5.9 のように攪拌を行い、ステンレス容器 (図 5.10) に移した。

#### 3. 希釈

2 で作成した 10 倍濃縮液体シンチレータに PC 3 L , LAB 24 L を加え、希釈した。

#### 4. 液液抽出

新しくクリーンルーム内に持ち込む器具は、外側をエタノール拭き、純水で洗浄し、内側はさらにアセトン洗浄後共洗いをを行った。純水と液体シンチレータを分液漏斗に図 5.11 のように 750 mL ずつ入れ、10 分間振盪を行った (図 5.12)。その後、純水と液体シンチレータ



図 5.11 分液漏斗模式図



図 5.12 振盪の様子

が分離するまで待ち、新しいステンレス容器に移す作業を 14 回行った。

### 5.2.2 窒素バブリング

次に、以下の手順 (図 5.13) でクリーンルーム内で窒素バブリングを行った。

1. 窒素パージ  
アクリル容器内を窒素で満たした
2. ほこり除去  
100 nm メッシュフィルターに液体シンチレータを通して、10 L のステンレスタンクを満した。 (図 5.14)
3. 窒素バブリング  
ステンレスタンク内で窒素バブリングを行った。このときの窒素バブリング体積は前述の通り液体シンチレータ体積の 25 倍とした。
4. 液体シンチレータ送液  
ステンレスタンク内の液体シンチレータをアクリル容器に移した。2~4 を 3 回繰り返し、アクリル容器を満した。

ここで、液体シンチレータの収縮を考慮して、テフロンチューブとガスバックを接続した。これは作成時の室温は約 25 °C であるのに対し、神岡坑内は約 10 °C であるため、液体シンチレータが収縮することが考えられる。その影響でアクリル容器が破損するのを防ぐため、テフロンチューブをつけており、さらにテフロンチューブが潰れるのを防ぐためにガスバックを接続した。窒素バブリング後、ステンレスタンクや流量計を取り外し、神岡に運搬した。

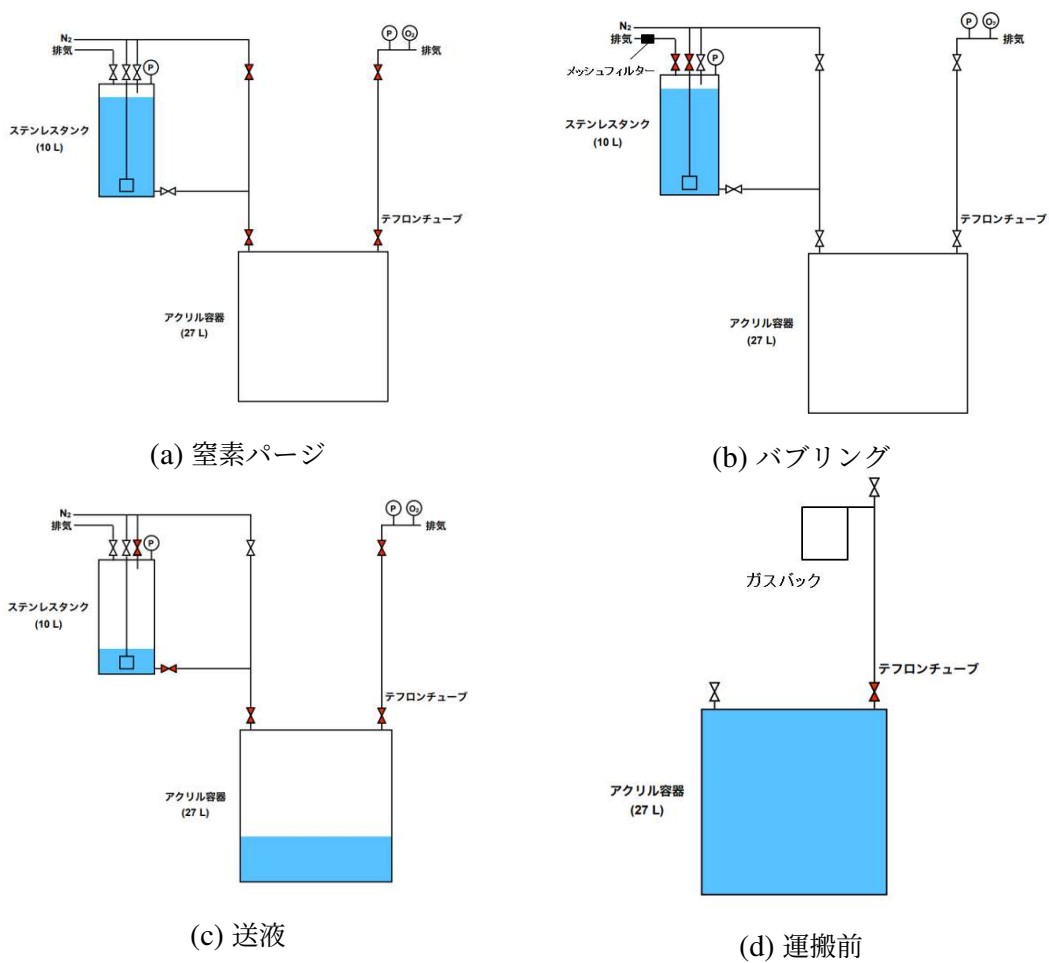


図 5.13 窒素バブリング方法

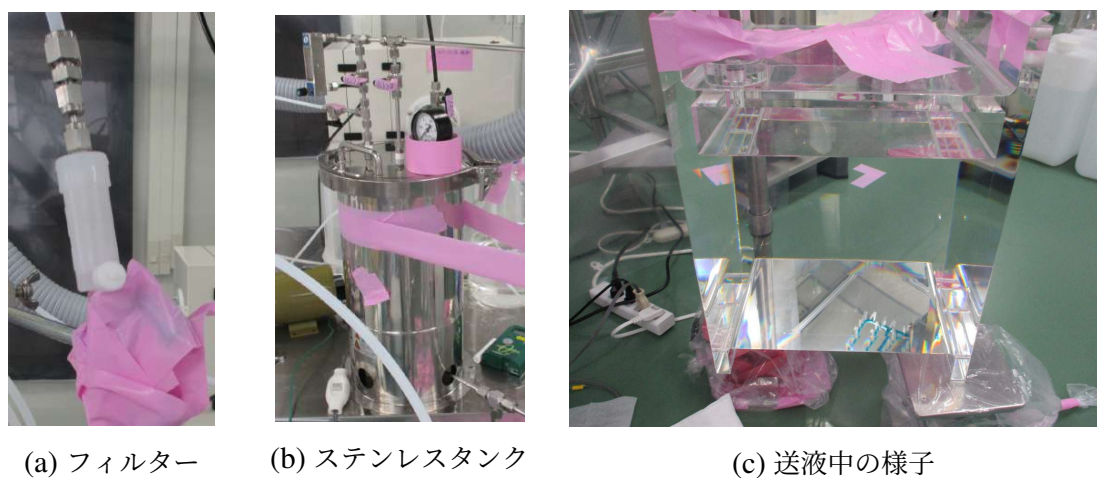


図 5.14 窒素バブリングに使用した器具

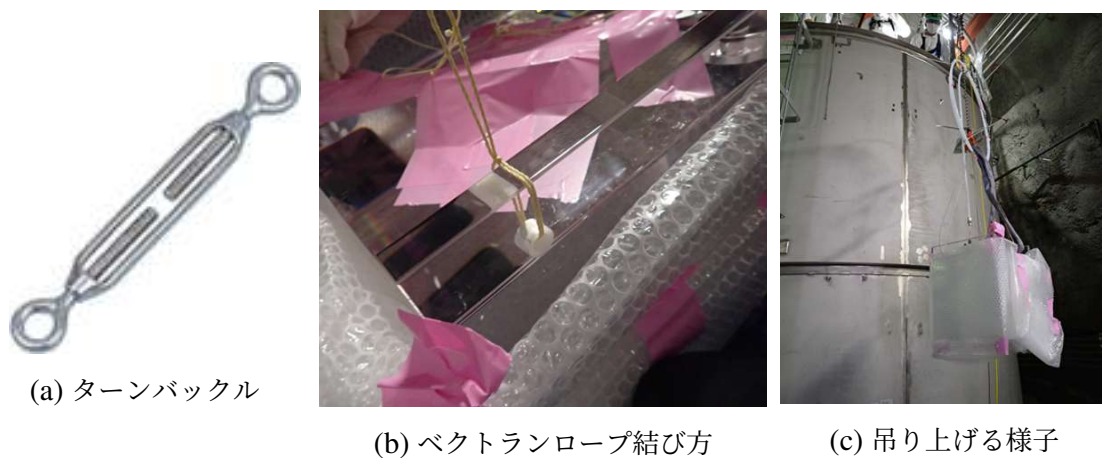


図 5.15 タンク外での作業

### 5.3 プロトタイプ検出器へのインストール

前述の通りに作成した液体シンチレータを、2023年12月21日にプロトタイプ検出器へインストールした。

#### 1. 器具の取り付け(下部)

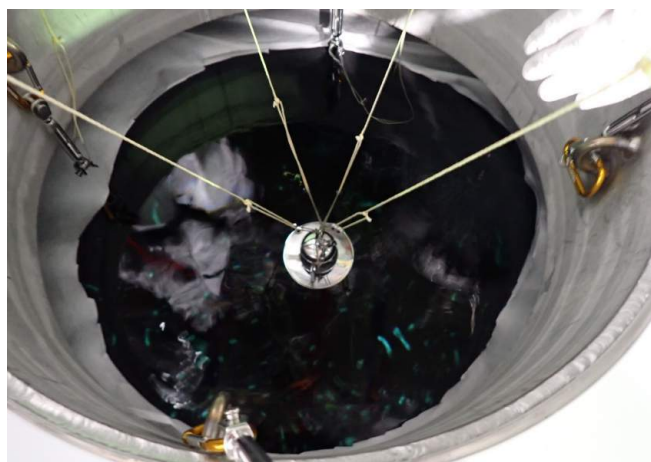
アクリル容器を少し吊るし、下部におもり、カラビナ、ベクトランロープをつけた。

#### 2. 器具の取り付け(上部)

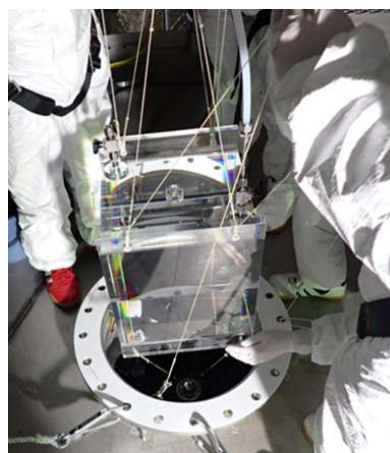
インストール後、フランジ付近に取り付けるためのベクトランロープとターンバックルをつけ、タンク上部まで吊り上げた。

#### 3. インストール

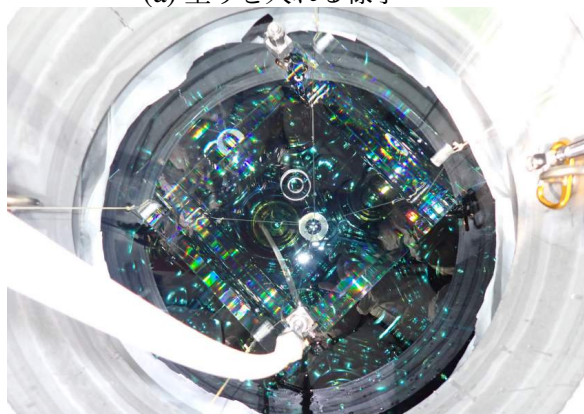
タンク中心のフランジを開けた。4方向を一人ずつ支え、おもり、アクリル容器の順に慎重にインストールした。最後にフランジを閉め、遮光した。



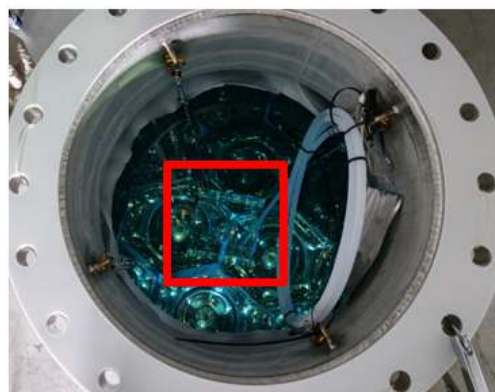
(a) 重りを入れる様子



(b) インストール直前の様子



(c) インストール中の様子



(d) インストール後の様子

図 5.16 タンク上部での作業。(d) の赤枠内にアクリル容器がある。



## 第 6 章

# 放射性不純物量の測定

プロトタイプ検出器でのデータ取得は 2022 年 12 月から行い、約一日一回のペースで run change を行っている。このようにして取得しているデータを normal run と呼ぶ。本章ではプロトタイプ検出器でのデータ取得と解析について述べる。まず 6.1 節ではデータ取得の方法、6.2 ではエネルギーキャリブレーションについて言及する。また、6.3 節では解析で発見された奇形の run について bad period や  $Q[13] / \text{TotalCharge}$  などのパラメータを設定し、カットを行った。それらの解析を元に、6.4 節では 5 章でプロトタイプ検出器にインストールした液体シンチレータの  $^{232}\text{Th}$  濃度を推定する。先述の通り、 $^{232}\text{Th}$  の濃度は  $0\nu 2\beta$  崩壊探索のための要求値には達しておらず (表 6.1)、現在 KamLAND2-Zen に新しくインストールする液体シンチレータの成分のうち  $^{232}\text{Th}$  濃度が測定できているのは Bis-MSB のみであり、LAB については未だ不明である。また、 $^{232}\text{Th}$  濃度が測定できている Bis-MSB についても、安定して要求されている濃度まで減らせる純化方法は見つかっていない [12]。そこで、まずプロトタイプ検出器では予定感度の  $10^{-15}$  g/g を達成することを目標とし、将来の拡張で Zen 800 から求めた  $0\nu 2\beta$  崩壊探索の要求値を目指すこととした。

表 6.1  $^{232}\text{Th}$  濃度

	$^{232}\text{Th}$ 濃度 [g/g]
液体シンチレータ (Bis-MSB 由来)	$2 \times 10^{-15}$
プロトタイプ検出器の感度	$\sim 10^{-15}$
反ニュートリノ観測の要求値	$< 10^{-14}$
$0\nu 2\beta$ 崩壊探索の要求値	$< 5 \times 10^{-16}$

### 6.1 データ取得

プロトタイプ検出器では 2022 年の 12 月からデータ取得を行ったが、誤って 2023 年 3 月、run27 までのデータを失ってしまった。そこで本研究では 2023 年 4 月 1 日から 2023 年 12 月 31 日までプロトタイプ検出器で取得したデータを利用して解析を進めた。解析に使用した計測時

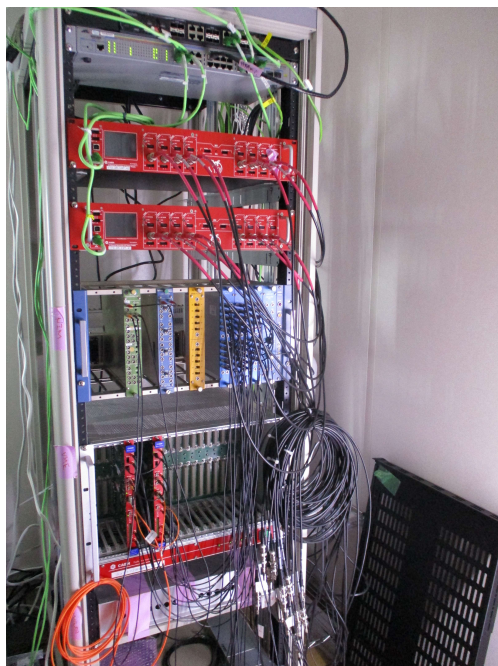


図 6.1 データ取得方法

間は合計  $2.24 \times 10^7$  s である。

### 6.1.1 取得方法

プロトタイプ検出器建設に伴い、測定小屋の建設も行った。測定小屋の内部は図 6.1 のようになっている。測定には R1470 の HV を 2 つ、V1751 のディジタイザーを 2 つ、CoMPASS を使用してデータ取得を行った。いずれも CAEN が製造している機器である。R1470 は 8 つの独立したチャンネルがついており、各チャンネルは  $\pm 8$  kV 最大電圧、3 mA 最大電流、9 W 最大電力を提供でき、リモート操作が可能である。V1751 は 10 ビットの分解能を持ち、信号を 1 GHz でサンプリングでき、複数台の同期が可能である。また、CoMPASS は同時 DPP 取得用ソフトウェアであり、異なるボードの同期や異なるチャンネル間の時間相関を取ってくることができる。一つの PMT に同時に約 5 p.e. 以上の光電子による電圧が検出されたときに測定されるようなセルフトリガーを各 PMT に設定して測定した。

### 6.1.2 解析方法

プロトタイプ検出器では前述のような方法でデータ取得したあと、waveform analysis で解析を行っている (図 6.2)。waveform analysis で取得できる波形は図 6.3 のような形で、図 6.4 のように信号が来た際、波形の立ち上がり時間を T、積分値を Q とし、各チャンネルで図 6.5 の (a) のように 1 p.e. 補正を行っている。その後、各チャンネルのデータを一つにまとめ、 $0.2 \mu\text{s}$  以内に 6 本以上入ったものについて、それらの信号の取り始めを TimeStamp、Q の合計を Tortal charge



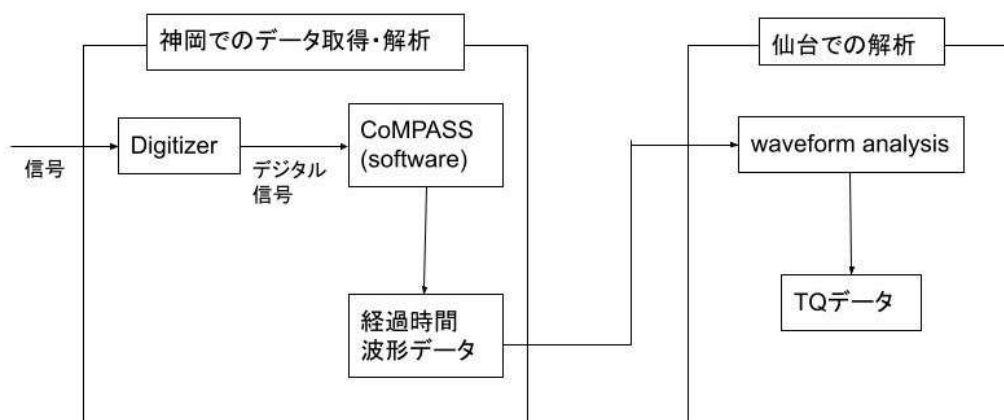


図 6.2 データ取得から解析までの流れ

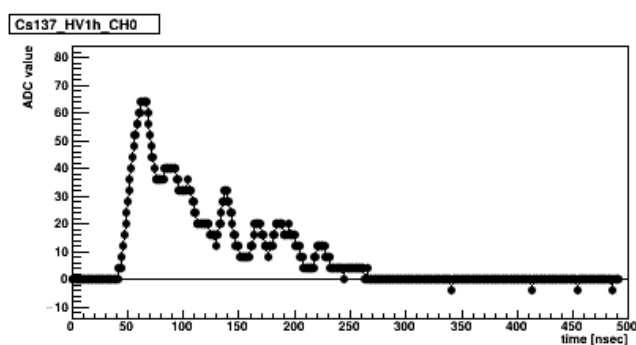


図 6.3 waveform analysis で取得できるデータ

とした。それらのデータを TQ ファイルにまとめる形で解析を行った。1.p.e. 補正のためのシンチレーション球での測定は約 3 ヶ月に一回ほどの頻度で測定を行っており、変化は図 6.5 の (b) のようになった。

## 6.2 エネルギーキャリブレーション

先行研究 [15] より、バックグラウンドは周囲の岩盤からのものが多いことがわかっている。本研究では岩盤からの  $^{208}\text{Tl}$  の  $\gamma$  線でエネルギーキャリブレーションを行った。

### 6.2.1 キャリブレーション方法

前述の方法で取得した TQ データについて Total Charge をヒストグラムに詰め、式 6.1 のような相誤差関数でフィッティングをし、mean 値が  $^{208}\text{Tl}$  の 2.6 MeV であるとしてキャリブレーション

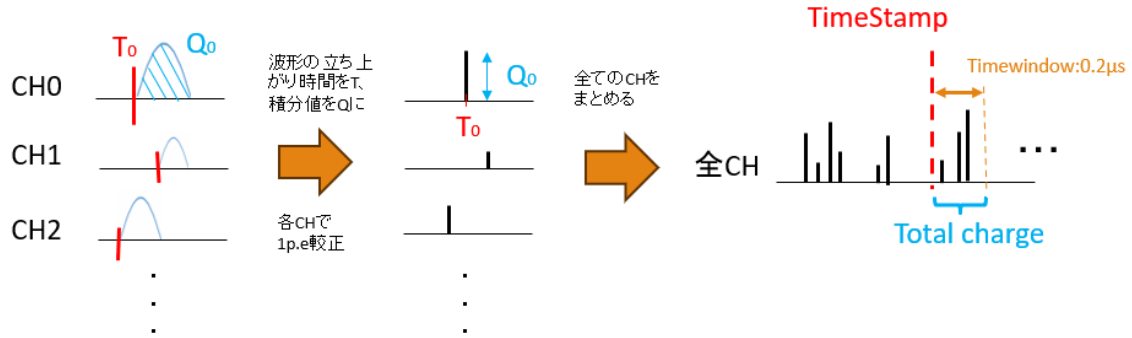


図 6.4 データ解析方法

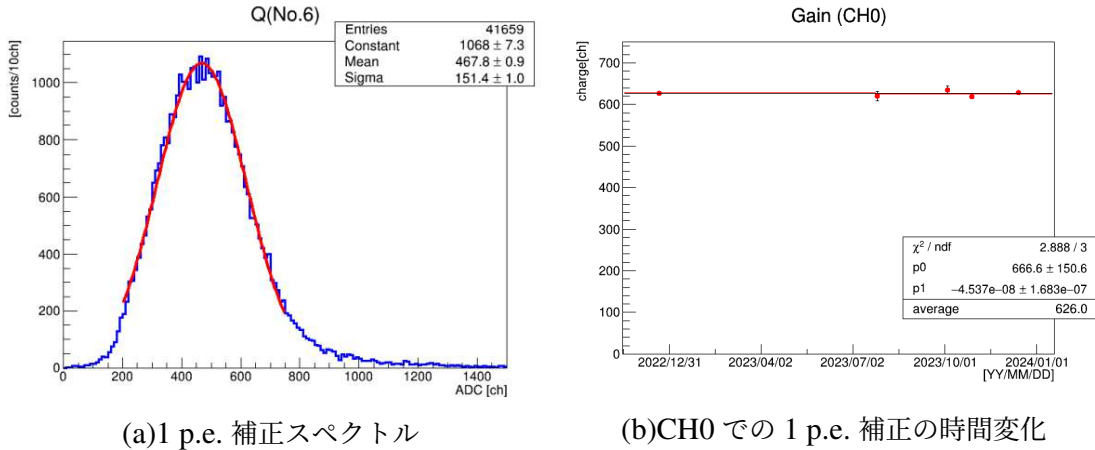


図 6.5 1 p.e. 補正

ションを行った。

$$\frac{a_0}{2} \left( 1.0 - \frac{2}{\pi} \int_0^{\frac{x-\mu}{\sqrt{2}\sigma}} e^{-t^2} dt \right) \quad (6.1)$$

ここで  $\mu$  が mean 値である。また、図 6.6 は run29 に対するエネルギーキャリブレーションの様子である。

## 6.2.2 mean 値の変化

全ての run についてエネルギーキャリブレーションを行い、mean 値の変化を示したグラフが図 6.7 である。run73 から run90 の大きなギャップは、稼働している PMT の本数が変化しているためである。run28 から run72 まででデータ取得できた PMT は CH1 と CH2 を除く 12 本である。CH1 はデータロストした run27 以前の範囲で故障していたものと思われる。また、CH2 についてはもともと回路が busy になった影響で HV が切れてしまっていたが、神岡坑内に入ったタイミングで再度 HV を入れ、run73 以降のデータ取得を再開した。また、run90 のタイミングで CH3 の PMT が故障してしまった。CH1 は現時点で光電面に剥がれが見られており (図 6.8)、CH3 はインピーダンスが 0.418 MΩ と、他の PMT の 4.95 MΩ より遥かに小さな値になってい

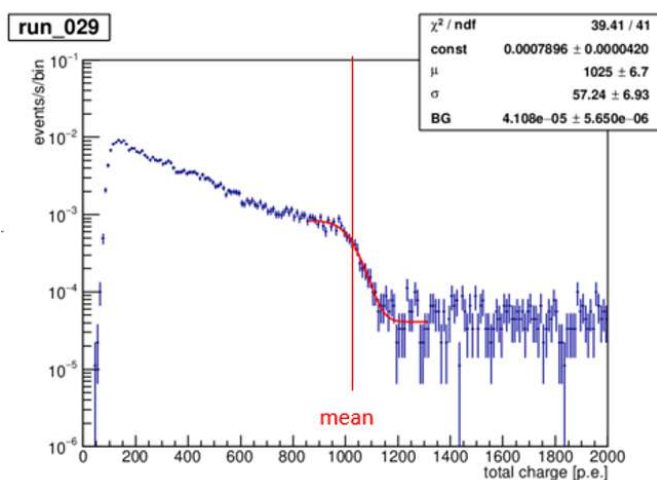


図 6.6 run29 のエネルギーキャリブレーション

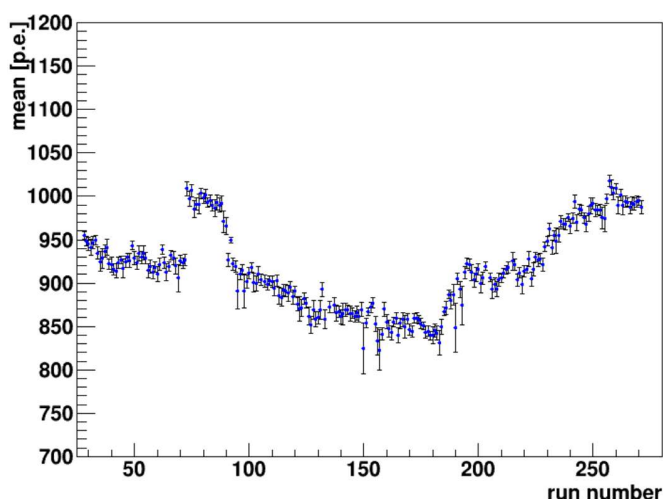


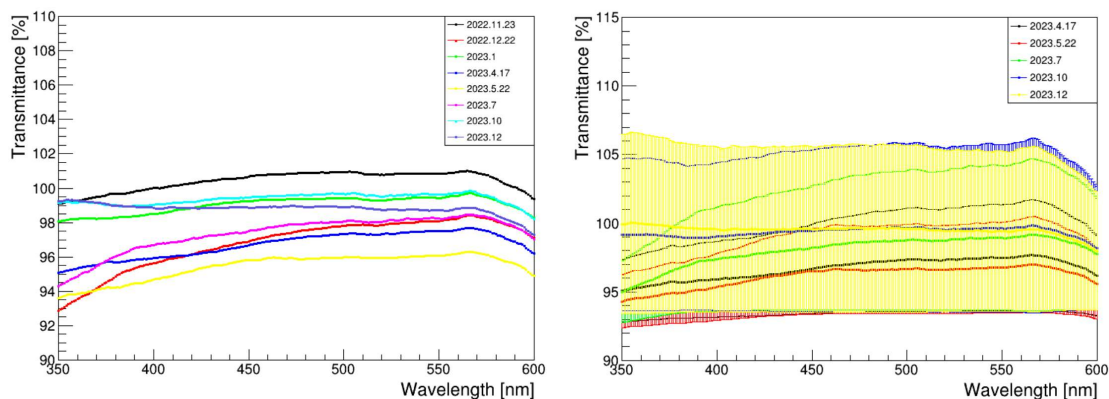
図 6.7 mean 値の変化

るのが確認されている。これらの結果から、PMT の故障には内部回路の問題が関係していると考えているが、実際の原因は検出器を停止し、PMT を取り出すまで調査が不可能である。

一方、run90 (6 月) から run180 (9 月) 付近にかけて徐々に mean 値が低下、run180 付近から上昇している原因については水の透過率の検証を行った。図 6.9 の (a) は 9 cm の測定結果であり、(b) は解析期間である 4 月から 12 月の透過率について式 4.6 を用いて計算した 2 m の透過率である。水の透過率の変化と mean 値の変化に目立った相関はみられない。連続的な mean 値の変化について検出器の光学パラメータが変化していることが原因の一つとして考えられるが、これも検出器停止後の検証となる。



図 6.8 タンク上部から見た CH1 の PMT。左が CH0、右が CH1。光電面が剥がれ、透明になっていることがわかる。



(a) プロトタイプ検出器純水透過率 (9 cm)

(b) プロトタイプ検出器純水透過率 (2 m)

図 6.9 プロトタイプ検出器 純水透過率

### 6.2.3 キャリブレーションファクターの検証

normal run のデータ取得は常に行っているが、3 ヶ月に一回ほどの頻度で放射線源を用いた測定も行っている。ここで用いている放射線源は  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  であり、 $^{137}\text{Cs}$  は 0.662 MeV の  $\gamma$  線、 $^{60}\text{Co}$  は 1.17 MeV と 1.33 MeV の  $\gamma$  線を放出する。これらの放射線源を図 6.10 のようにタンク上面から 1.8 m の位置で吊り下げ、測定を行った。

その測定結果に対して上記のエネルギーキャリブレーションと同様の操作をした結果が図 6.11 である。

これらより各線源の mean 値は一致していることから、normal run のエネルギーキャリブレーションは適切であるといえる。

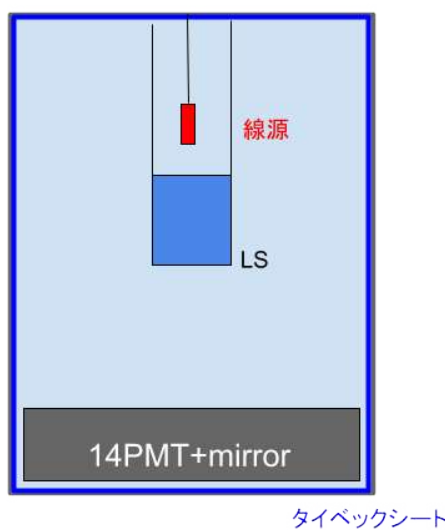


図 6.10 線源を用いた測定

## 6.3 イベントカット

この節では奇形の run に対するイベントカットについて言及する。エネルギーキャリブレーションを行っていく上で、チャージ分布が通常と違う形を示している run があることがわかった。そのような run についてイベントカットを行った。イベントカットは時間と 13 番の PMT の大きく 2 つのパラメータを設定した。

### 6.3.1 時間依存カット

ここではまずチャージ分布が奇形な run について時間依存があるかどうか確かめた。測定データを 1000 s ずつビンに詰め、ヒストグラムを作成し、フィッティングを行い (図 6.12)、 $\pm 5\sigma$  の範囲を超えたビンを前後 1 ビンずつ含めてカットを行った。カット前後の変化は図 6.13 であり、0.5 MeV 付近のスペクトルに変化が見られる。時間依存カットを全 run に施すことによって  $4.19 \times 10^5$  s のカットを行っており、全計測時間のうちの 1.87 % 分を占める。

### 6.3.2 フラッシャーカット

フラッシャーとは PMT 自体の発光によって引き起こされるものであり、KamLAND でもフラッシャーカットは行われている [16]。時間依存カットについては述べたが、run200 付近から時間依存カットでは正常に戻らない run が多くなった。各 PMT の電荷分布を確かめたところ、13 番の PMT で大きく変化が見られた (図 6.14)。この結果より、13 番の PMT のチャージと Total charge の比が 0.3 より大きい部分をカットした。その結果、Total charge の分布は図 6.15 のようになった。

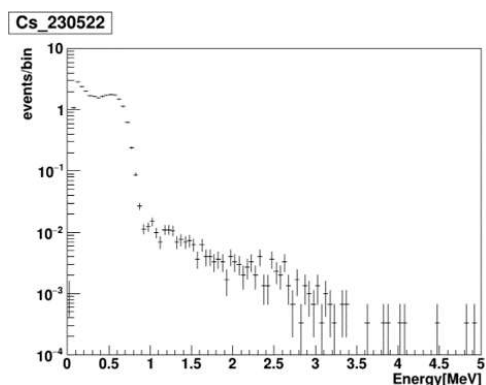
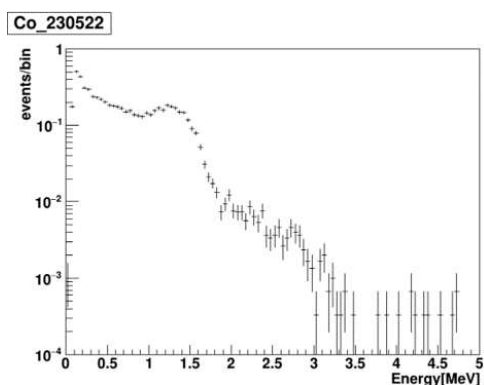
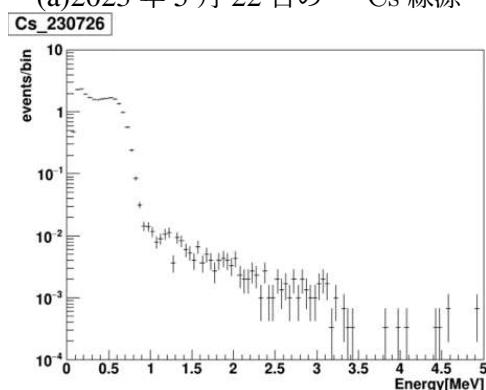
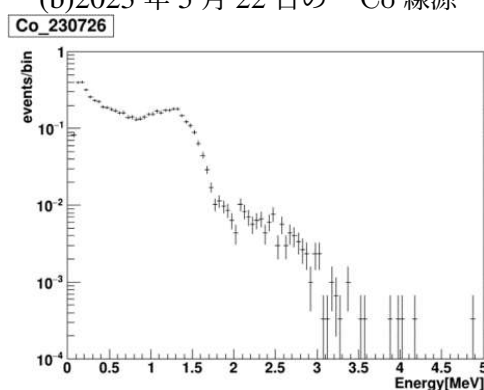
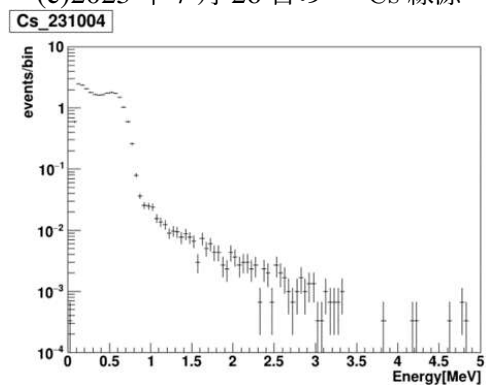
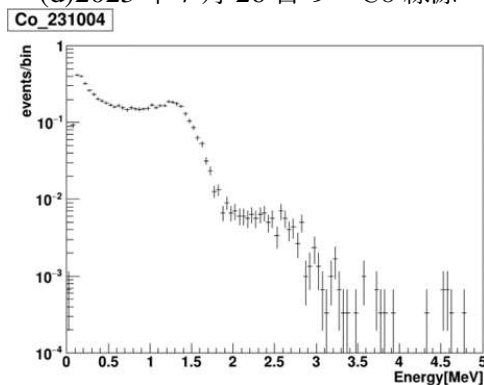
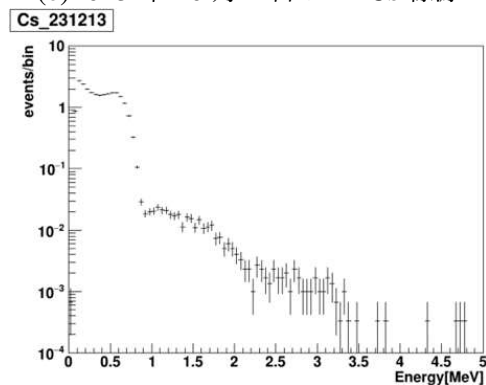
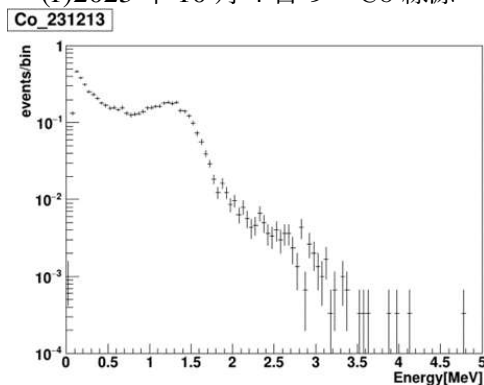
(a)2023年5月22日の $^{137}\text{Cs}$ 線源(b)2023年5月22日の $^{60}\text{Co}$ 線源(c)2023年7月26日の $^{137}\text{Cs}$ 線源(d)2023年7月26日の $^{60}\text{Co}$ 線源(e)2023年10月4日の $^{137}\text{Cs}$ 線源(f)2023年10月4日の $^{60}\text{Co}$ 線源(g)2023年12月13日の $^{137}\text{Cs}$ 線源(h)2023年12月13日の $^{60}\text{Co}$ 線源

図6.11 線源のキャリブレーション

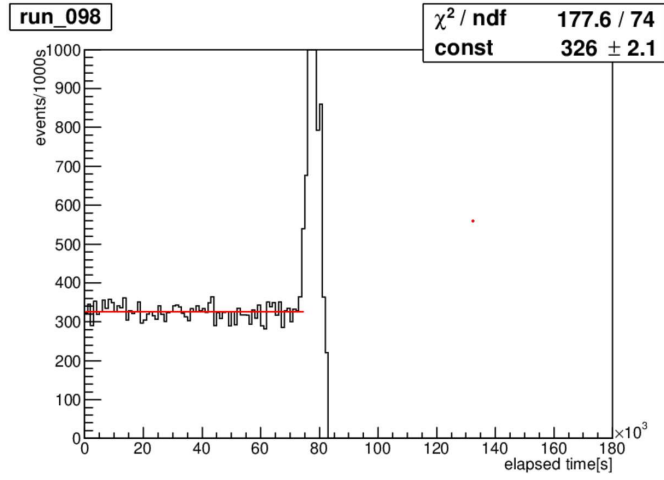
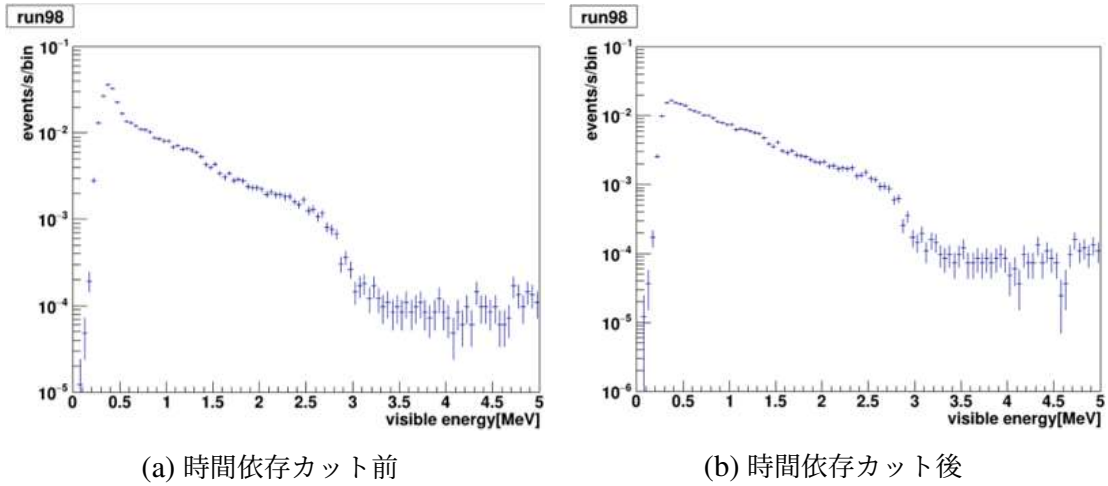


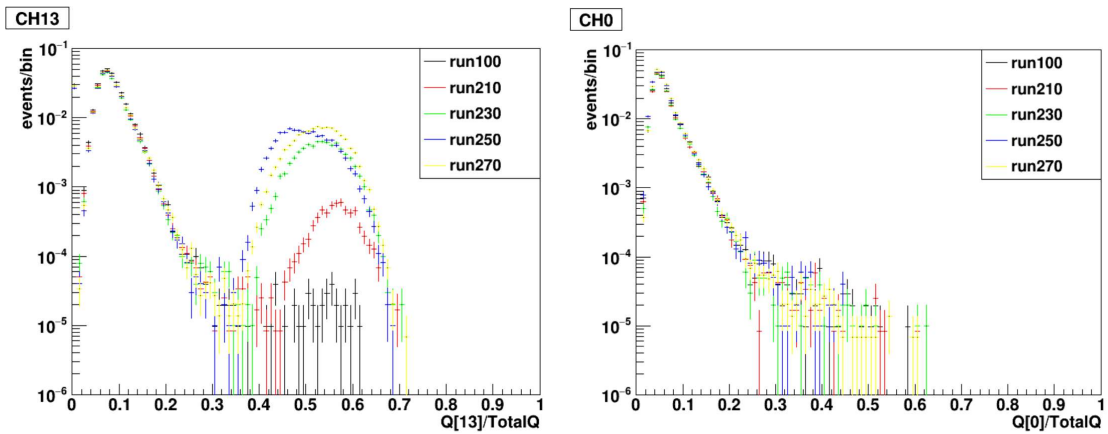
図 6.12 時間依存ヒストグラム



(a) 時間依存カット前

(b) 時間依存カット後

図 6.13 時間依存カット前後



(a)CH13 のチャージと Totalcharge の比。  
CH[13]/TotalQ が 0.3 以上の範囲でイベント数が増えていることがわかった。

(b)CH0 のチャージと Total charge の比。  
CH13 以外の他の CH も同様に run ごとの差が殆どない結果になった。

図 6.14 各 PMT の電荷分布の比

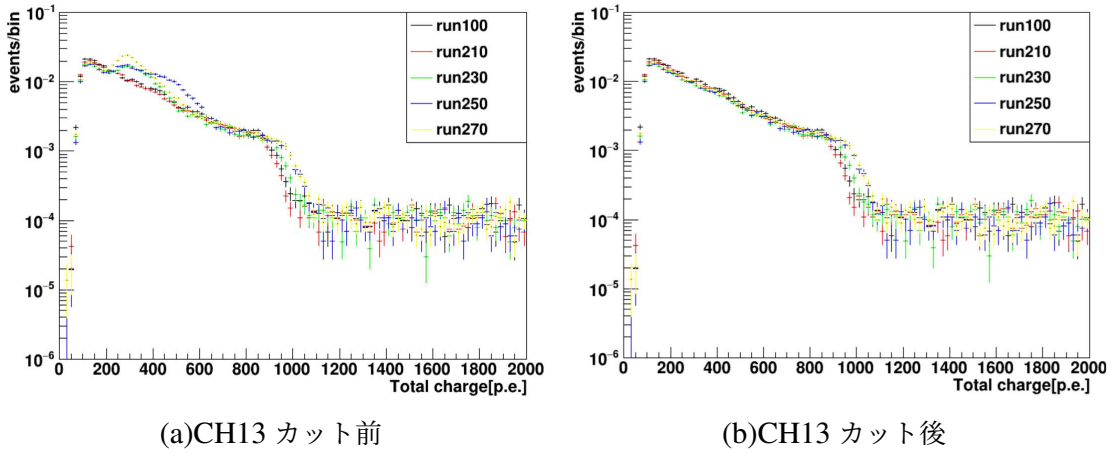


図 6.15 CH13 カット前後

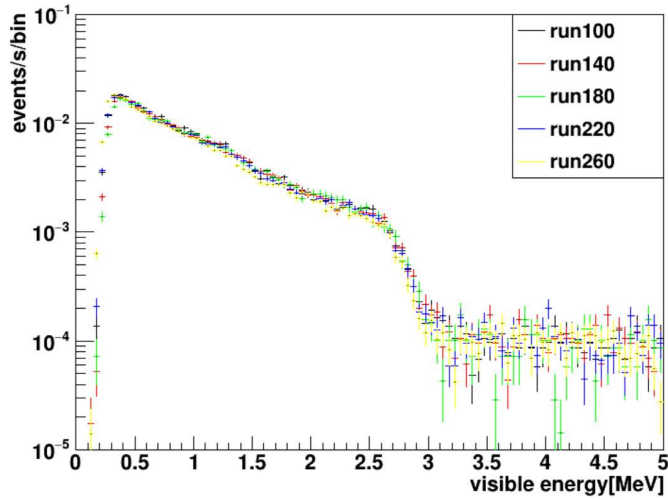


図 6.16 エネルギー分布安定性

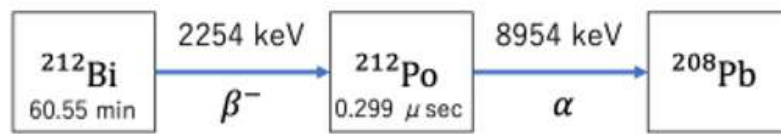
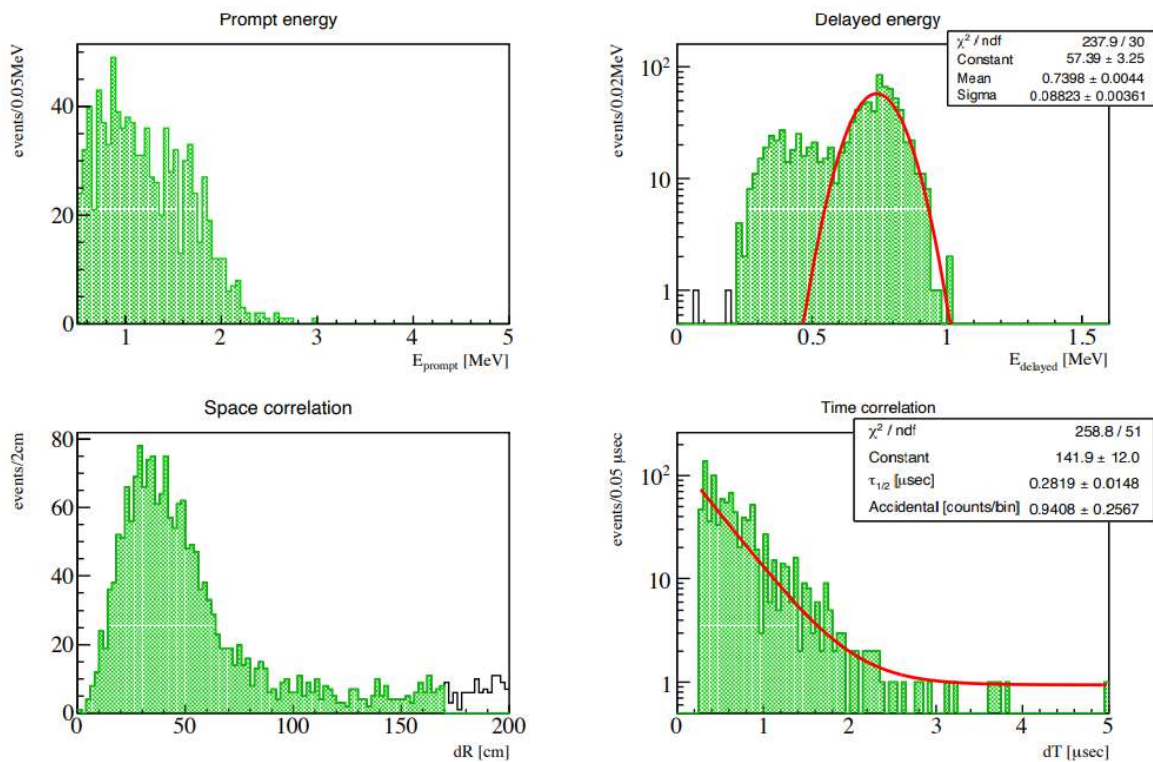
時間依存カットとフラッシャーカットをかけ、エネルギー較正を行ったのが図 6.16 である。これより、エネルギーは安定していることがわかる。

## 6.4 $^{232}\text{Th}$ 濃度推定

normal run で取得したデータからプロトタイプ検出器にインストールした液体シンチレータの  $^{232}\text{Th}$  濃度を推定する。 $^{212}\text{Bi}$  と  $^{212}\text{Po}$  の遅延同時計測を用いて計測を行った。 $^{232}\text{Th}$  濃度を推定するために図 6.17 のように  $^{212}\text{Bi}$  が出す  $\beta$  線と  $\gamma$  線を先発信号とし、 $^{212}\text{Po}$  の  $\alpha$  線を後発信号とする。これは KamLAND-Zen ですで行われている解析方法であり、KamLAND の解析では図 6.18 のようになった。KamLAND では

- 後発信号が 0.2 MeV から 1.3 MeV
- 先発信号と後発信号の時間差が  $1.9 \mu\text{s}$  より小さい



図 6.17  $^{212}\text{Bi}$  と  $^{212}\text{Po}$  の遅延同時計測 模式図図 6.18 KamLAND-Zen での  $^{212}\text{Bi}$  と  $^{212}\text{Po}$  の遅延同時計測 [17]

- 先発信号と後発信号の距離が 170 cm より小さい

という条件でカットを行っているが、今回の解析では

- 先発信号が 1.0 MeV から 4.0 MeV  
図 6.18 のように  $^{212}\text{Bi}$  は 2.3 MeV 以下の  $\beta$  線と  $\gamma$  線を放出する。
- 後発信号は 1.02 MeV から 1.23 MeV  
6.4.2 節より  $^{212}\text{Po}$  の見かけのエネルギーは 1.12 MeV であるが、 $\pm 2\sigma$  の範囲を選択した。
- 時間差を 0.2  $\mu\text{s}$  から 1.5  $\mu\text{s}$   
 $^{212}\text{Po}$  は 0.299  $\mu\text{s}$  で崩壊する。また、0.2  $\mu\text{s}$  以下の範囲は 2 つの信号が 1 つの信号として解析されてしまう。

とした。

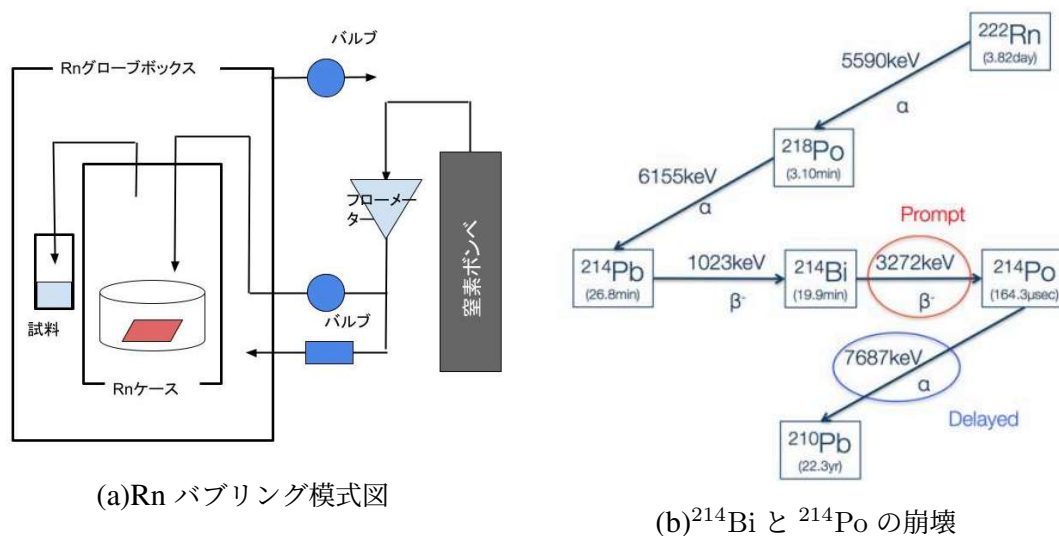


図 6.19 Rn バブリング

### 6.4.1 $\alpha$ クエンチ

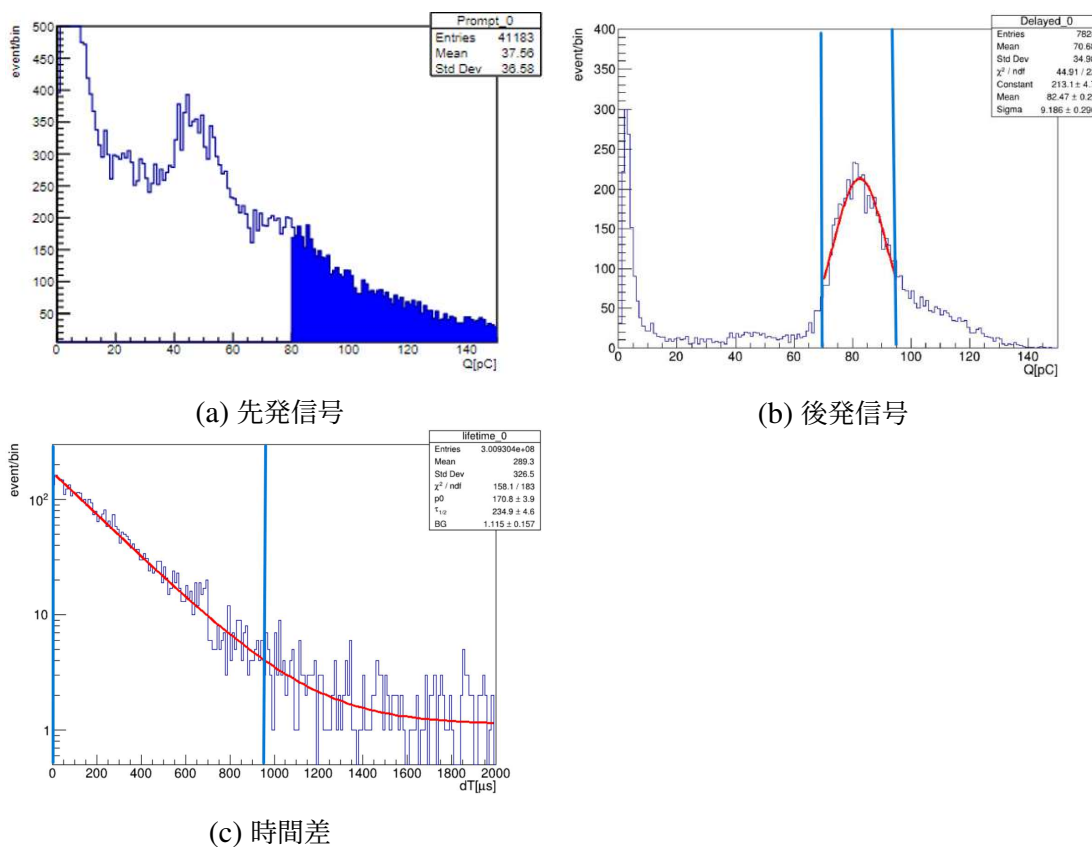
$\alpha$  線のエネルギーを考える場合、軽粒子 ( $\beta$  線) と重粒子 ( $\alpha$  線) の発光応答の違い (クエンチング) の影響を考えなければならない。そこで、プロトタイプ検出器にインストールした液体シンチレータと同じ組成の液体シンチレータを用いてバイアルでクエンチングファクターを測定した。

#### $^{214}\text{Bi}$ と $^{214}\text{Po}$ の遅延同時計測による発光量測定

本研究では  $^{214}\text{Po}$  の  $\alpha$  線による発光量を測定し、その結果を元に  $^{212}\text{Po}$  の  $\alpha$  線に適用させる。先述の発光量測定と同様に窒素バブリングを行う。また、 $^{214}\text{Po}$  は  $^{222}\text{Rn}$  の崩壊娘核であるため、図 6.19 のように  $^{222}\text{Rn}$  を大量に含む空気をバイアル内に閉じ込めて、 $\alpha$  崩壊するのを待った。その液体シンチレータを暗筒のなかで PMT の上にのせ、発光量測定を行った。信号が入った時間と発光量を記録し、1 番目と 2,3,4... 番目の信号の時間差、2 番目と 3,4,5... 番目の時間差のように全信号について時間差を測定した。測定結果を以下の図 6.20 に示す。先発信号と後発信号の時間差が 5 から 950  $\mu\text{s}$ 、先発信号が 80 pC 以上、後発信号が 70 から 95 pC までのイベントを用いた。先発信号と後発信号の時間差のスペクトルは

$$N = [p0] \exp\left(-\frac{t}{\tau_{1/2}}\right) + [p2] \quad (6.2)$$

でフィッティングした。これを用いると半減期は  $167.83 \pm 8.83 \mu\text{s}$  となり、実際の半減期である  $164.3 \mu\text{s}$  と誤差の範囲で一致した。また、 $\alpha$  線のピークは  $82.47 \pm 0.21 \text{ pC}$  となった。

図 6.20  $^{214}\text{Bi}$  と  $^{214}\text{Po}$  の発光量測定

### $^{137}\text{Cs}$ と $^{60}\text{Co}$ の後方散乱イベントによる発光量測定

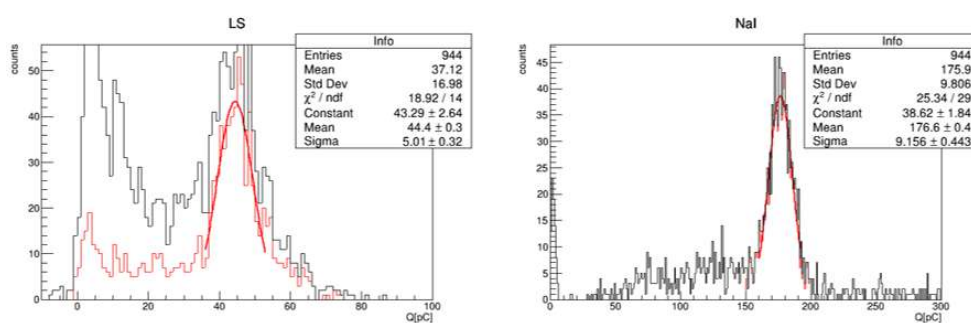
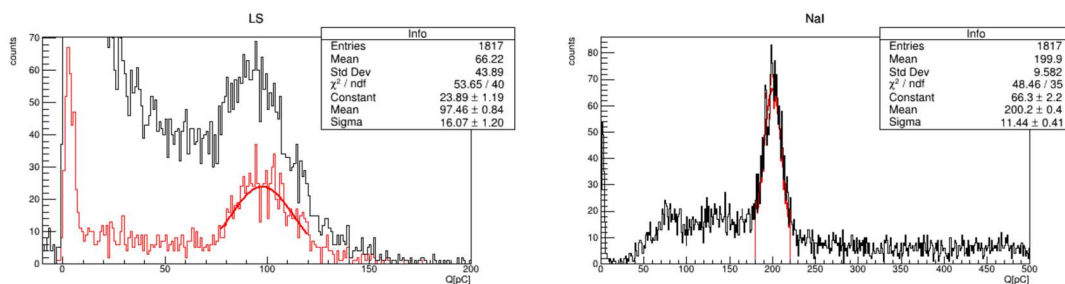
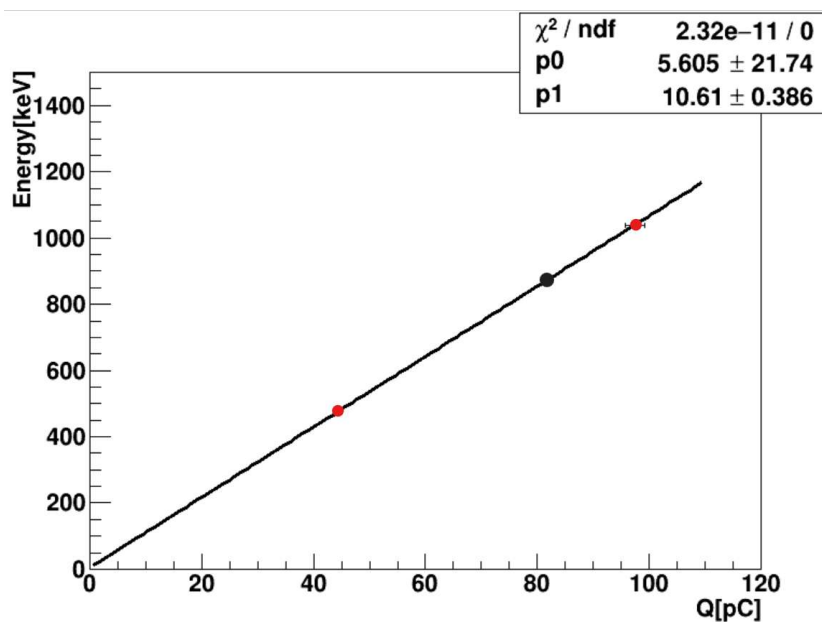
エネルギーに換算するために  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  の後方散乱イベントによる発光量測定も行った。結果は図 6.21 と図 6.22 のようになった。ここで、 $^{60}\text{Co}$  は 1.173 MeV と 1.333 MeV の 2 つの  $\gamma$  線を出す。今回の測定ではピークが一つに見えており、誤差を少なくするため、2 つのエネルギーの平均値が今回のピークと一致するとして解析を行った。また、今回のセットアップでは 170 度後方散乱を利用している。その時のエネルギーと今回の発光量測定の結果をまとめると表 6.2 のようになり、前述の  $^{214}\text{Bi}$  と  $^{214}\text{Po}$  の遅延同時計測による発光量測定も合わせ、

$$y = [p1]x + [p0] \quad (6.3)$$

でフィッティングを行うと図 6.23 のようにできる。

表 6.2 線源を用いた後方散乱の発光量測定

	後方散乱 (170 度)[keV]	Q[pC]
$^{137}\text{Cs}$	476.65	$44.4 \pm 0.3$
$^{60}\text{Co}$	1039.57	$97.46 \pm 1.77$

図 6.21  $^{137}\text{Cs}$  後方散乱イベントによる発光量測定図 6.22  $^{60}\text{Co}$  の後方散乱イベントによる発光量測定図 6.23 エネルギーキャリブレーション。赤点は 477 keV, 44.4 pC の  $^{137}\text{Cs}$  線源、1040 keV, 97.5 pC の  $^{60}\text{Co}$  線源を用いた後方散乱イベント。黒点は  $^{214}\text{Po}$ 。

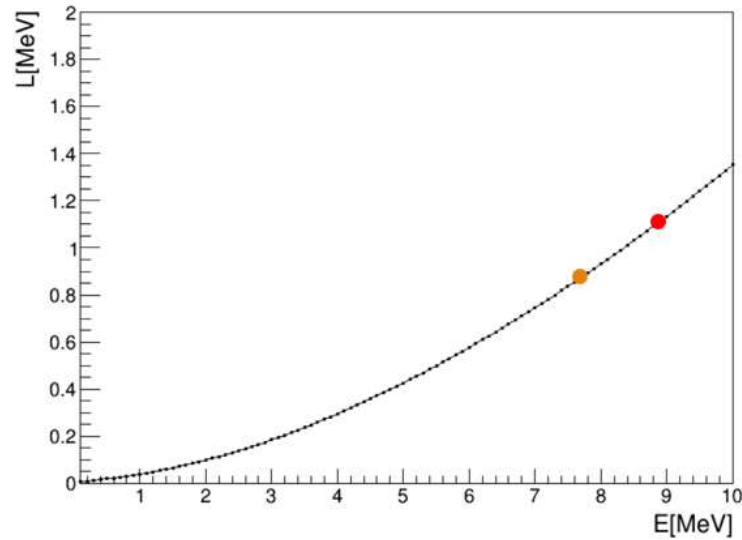


図 6.24 real energy(E) と visible energy(L) の変換。オレンジが  $^{214}\text{Po}$ 、赤が  $^{212}\text{Po}$ 。

これらの結果から、LAB-LS について  $^{214}\text{Po}$  の  $\alpha$  線の visible energy は  $\alpha$  線のピークは  $82.47 \pm 0.21$  pC であったことを用いて  $y = 10.6x + 5.6$  において  $x = 82.5$  とすると  $872.3 \pm 40.9$  keV と求められた。ここでの誤差は発光量測定の 1.6 %、発光量測定のガウシアンフィットの誤差、線形フィッティングの誤差を考慮した。また、クエンチングファクターは

$$\frac{872.3 \pm 40.9}{7687} = \frac{1}{8.81 \pm 0.41} \quad (6.4)$$

であると求められた。

#### 6.4.2 $^{214}\text{Po}$ から $^{212}\text{Po}$ への変換

ここでは  $^{214}\text{Po}$  から  $^{212}\text{Po}$  への変換について述べる。液体シンチレータの発光量に対するエネルギー依存性は Birks の式

$$L(E) = S \int_0^E \frac{dE}{1 + kB(\frac{dE}{dx})} \quad (6.5)$$

に従うことがわかっている [18]。式 6.5 において  $S = 1$  とした上で  $^{214}\text{Po}$  の 7.69 MeV が 0.872 MeV になるような  $kB$  を求めた。 $kB = 7.02 \times 10^{-3}$  g/cm<sup>2</sup>/MeV とすると  $\alpha$  線のエネルギーは図 6.24 のようにかける。よって  $^{214}\text{Po}$  (7.69 MeV) が 0.872 MeV のとき、 $^{212}\text{Po}$  (8.95 MeV) は  $1.12 \pm 0.05$  MeV になる。

#### 6.4.3 $^{212}\text{Bi}$ と $^{212}\text{Po}$ の遅延同時計測

$^{232}\text{Th}$  濃度を推定するために図 6.17 のように  $^{212}\text{Bi}$  が出す  $\beta$  線と  $\gamma$  線を先発信号とし、 $^{212}\text{Po}$  の  $\alpha$  線を後発信号とした。先発信号 ( $E_p$ ) のカットを 1.0 ~ 4.0 MeV、時間差 ( $dT$ ) を 0.2 ~ 1.5  $\mu\text{s}$

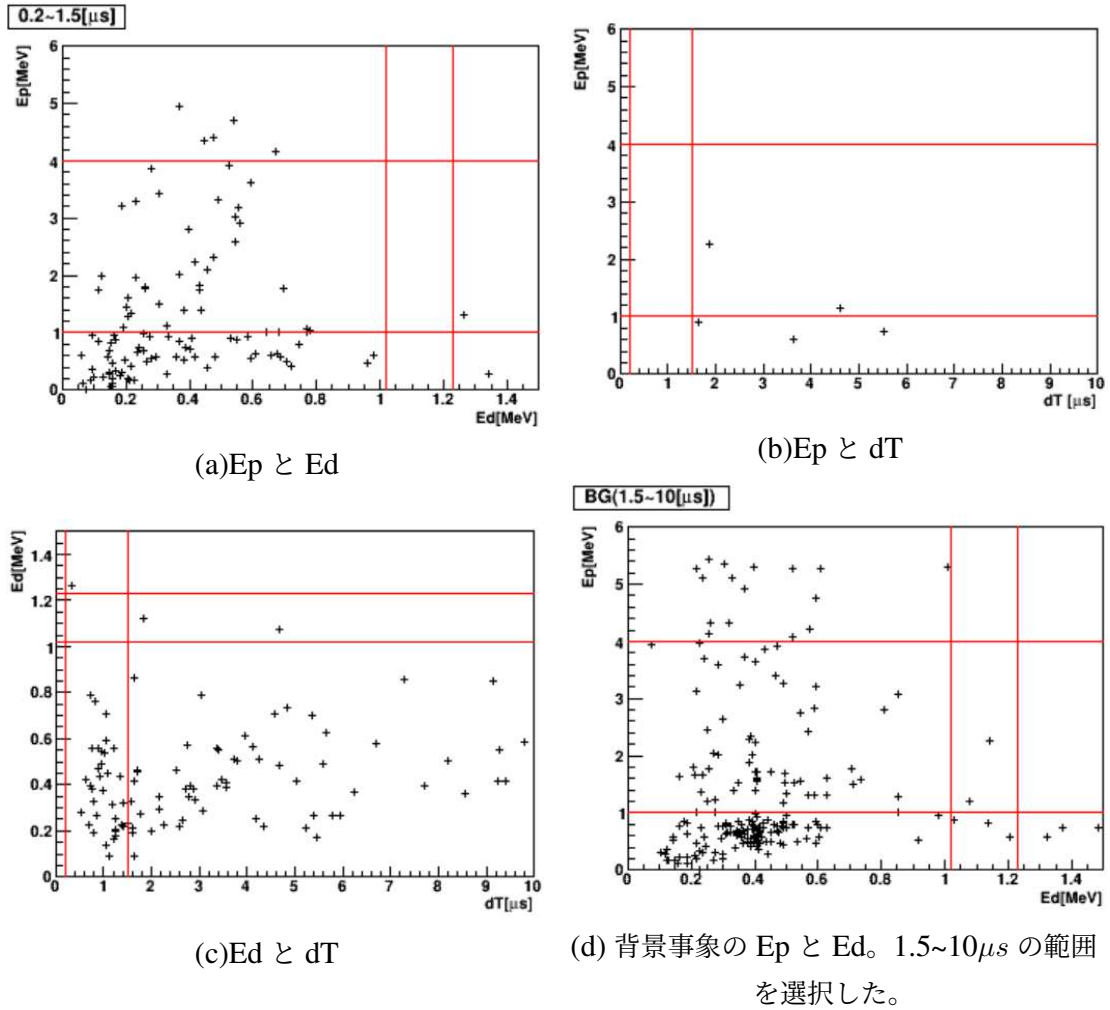


図 6.25 各パラメータ散布図

とした。また後発信号 (Ed) のカットは、1.12 MeV を Total charge に変換すると

$$\frac{1025\text{p.e.}}{2.6\text{MeV}} \times 1.12\text{MeV} = 434\text{p.e.} \quad (6.6)$$

となり、

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{434}} = 4.8\% \sim 0.054\text{MeV} \quad (6.7)$$

となることより  $1.12 \pm 2\sigma$  の 1.02 MeV から 1.23 MeV を選択した。

それぞれの相関は図 6.25 のようになった。

検出効率は

$$\int_{0.2}^{1.5} \exp\left(-\frac{t}{0.423}\right) dt = 59.7\% \quad (6.8)$$

となった。

よって、観測数は 0、バックグラウンド期待数を

$$2 \times \frac{1.5 - 0.2}{10 - 1.5} = 0.31 \quad (6.9)$$

とすると、イベントレート上限値 (90% C.L.) は 2.14 となり [19]、

$$\begin{aligned} \frac{\text{events}}{\text{lifetime efficiency}} \frac{1}{1} &= \frac{2.14}{2.20 \times 10^7 \text{s}} \frac{1}{0.597} \\ &= 1.63 \times 10^{-7} \text{Bq} \end{aligned} \quad (6.10)$$

$^{232}\text{Th}$  は 1 g あたり 4100 Bq であることがわかっているので、

$$\frac{1.63 \times 10^{-7} \text{Bq}}{4100 \text{Bq/g}} = 3.97 \times 10^{-11} \text{g} \quad (6.11)$$

プロトタイプ検出器にインストールした液体シンチレータは  $25.6 \times 10^3 \text{ g}$  であるので、 $^{232}\text{Th}$  濃度上限値は

$$\frac{3.97 \times 10^{-11} \text{g}}{25.6 \times 10^3 \text{g}} = 1.6 \times 10^{-15} \text{g/g} \quad (6.12)$$

$^{232}\text{Th}$  濃度の要求値は表 6.1 であるため、シミュレーションで求めた感度と反ニュートリノ観測の要求値は達成している。しかし  $0\nu 2\beta$  崩壊探索の目標値には届いていないため、背景事象を解析的に除去する粒子識別などの別な手法も検討する必要がある。





## 第7章

# 結論

本研究では、集光ミラーの素材選定と、KamLAND2-Zen 実験のプロトタイプ検出器内にインストールした液体シンチレータの性能評価、 $^{232}\text{Th}$  濃度の推定を行った。まずプロトタイプ検出器にインストールするミラーの素材を決定するため、反射率を測定し、加速劣化試験を行った。その結果、A 社製のトップコートがアクリル系樹脂被膜、基板はアクリル、アルミ蒸着のミラーが適切だと考え、20 インチ PMT を作成、プロトタイプ検出器内に設置した。また、KamLAND2-Zen 実験のために行った追実験では、金属蒸着の無機は反射率に影響しないこと、銀の基板よりアルミの基板のほうが反射率が高くなることがわかった。また、プロトタイプ検出器にインストールするための液体シンチレータの作成を行った。今回作成した液体シンチレータは液液抽出によって純化を行った。純化によって発光性能が低下しないことを確かめ、窒素バブリング時間は液体シンチレータ体積の 25 倍以上必要であることがわかった。作成した 30 L の液体シンチレータは 2022 年の 12 月にプロトタイプ検出器にインストールした。その後データ取得を開始し、エネルギーキャリブレーションを行った。さらに時間依存カットとフラッシャーカットによって安定したデータ観測を可能とした。また、LAB-LS における  $\alpha$  クエンチングファクターが  $\frac{1}{8.81 \pm 0.41}$  であることを求めた。 $^{232}\text{Th}$  濃度の上限値は  $1.6 \times 10^{-15}$  g/g であることがわかった。しかし、ミラーの反射率については目標である 85 % に届いていないため、今後もミラー素材の選定が必要である。また、 $^{232}\text{Th}$  濃度はシミュレーションの精度とは一致しており、反ニュートリノ観測の要求値は達成したが、 $0\nu 2\beta$  崩壊探索の要求値には届いていないため、粒子識別などの別の手法を探ることが必要である。



## 謝辞

本研究活動に当たりたくさんの方々にご指導、ご協力をいただきました。

はじめに、学部4年生の時から指導教員として大変多くのアドバイスを頂いた清水先生に深く感謝申し上げます。理解力が乏しく、プログラミングに疎い私に対しても優しく丁寧に説明をしていただいたり、発表スライドについても何度もやり取りをしていただいたりと大変お世話になりました。清水先生からご指摘やアドバイスをいただくときにいつも柔らかい口調だったことが私にとってとてもありがたく、わからないことがあったらいつでも聞きに行こうと安心感をもって研究を進めることができました。

センター長の井上先生は、学部生の頃に授業で KamLAND について熱弁していた姿をよく覚えています。大学入学時から KamLAND に興味はありましたが、井上先生の講義を聞いてこの研究室を選び、本当に良かったと感じております。

また、岸本先生には主に LS meeting でお世話になりました。スライドの見せ方やグラフの表示の仕方等についてから実験結果の捉え方までたくさんのアドバイスを頂きました。

また、中村陸生さん、川田さんには実験手法をお教えいただいたり、LS meeting で私のつたない説明に対してたくさんの質問をいただいたりし、自分の理解を深めることや説明の仕方を考えることにも繋がりました。

市村先生にはシフトトレーニングや4年ゼミでお世話になりました。コラボレーションミーティングのときや、修論の進捗についても度々暖かいお言葉をいただき、とても励まされました。

そして玉井先生にはすれ違うたびにお声がけをいただき、センターであまり人と話す機会がなかった私にとってとてもありがたい機会をいただきました。

また同期の皆さんには頼ることばかりで、解析を手伝ってもらったり、私の理解が不十分な点を指摘して頂いたり、プロトタイプ検出器建設の際には大変な作業を任せてしまったりとご迷惑をおかけすることもたくさんありました。大変感謝しております。

その他にもニュートリノセンターの教員の皆様、技術職員の皆様、沢山の方々のお陰でこの修士論文を仕上げることができました。最後に、陰ながら支えてくださった家族や研究室外で私を支えてくださった周りの方々にも深く感謝を申し上げます。ありがとうございました。



## 参考文献

- [1] 藪本洋, “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”, (2011).
- [2] A. G. et al., “Search for Majorana Neutrinos near the Inverted Mass Hierarchy Region with KamLAND-Zen”, *Phys. Rev. Lett* (2016), DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.082503](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.082503).
- [3] 竹内敦人, “First Search for Majorana Neutrinos in the Inverted Mass Hierarchy Region with KamLAND-Zen”, 博士論文, 東北大学 (2022).
- [4] S. A. et al., “Search for the Majorana Nature of Neutrinos in the Inverted Mass Ordering Region with KamLAND-Zen”, *Phys. Rev. Lett* (2023), DOI: [10.1103/PhysRevLett.130.051801](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.130.051801).
- [5] 蜂谷尊彦, “KamLAND-Zen 実験における信号波形情報を用いた背景事象除去の研究”, (2016).
- [6] 和田佳樹, “KamLAND2-Zen 実験における発光性バルーンのための高発光液体シンチレータの開発”, 修士論文, 東北大学 (2020).
- [7] 後藤杏奈, “KamLAND2-Zen 実験の液体シンチレータに導入する最適な波長変換剤の選定と濃度決定”, 修士論文, 東北大学 (2022).
- [8] 朝倉康太, “KamLAND-zen 次期計画へ向けた新型 pmt の性能研究”, (2015).
- [9] (2017).
- [10] W. L.-Y. et al., “Study of Tyvek reflectivity in water”, *Chinesse Phys. C* **36** (2012), DOI: [10.1088/1674-1137/36/7/011](https://doi.org/10.1088/1674-1137/36/7/011).
- [11] 三本杉洗斗, “KamLAND2-Zen 実験のための集光ミラーの形状最適化”, (2021).
- [12] 倉澤真帆, “KamLAND2-Zen 実験のための有機物に含まれる極微量放射性元素の高感度測定方法と純化方法の開発・研究”, 修士論文, 東北大学 (2023).
- [13] 小畑旭, “Xe を用いた二重ベータ崩壊実験のための集光ミラーと大光量液体シンチレータの開発”, (2013).
- [14] 寺岡夕里, “金属スカベンジャーによる KamLAND-Zen の低放射能化に関する研究”, 修士論文, 東北大学 (2017).
- [15] 吉田雄貴, “KamLAND2 プロトタイプ検出器におけるシミュレーションの構築と極低放射能分析感度の評価”, 修士論文, 東北大学 (2022).
- [16] 畑和実, “First Search for Charged Excited States in WIMP Dark Matter with KamLAND-

- Zen”, 博士論文, 東北大学 (2023) .
- [17] 尾崎秀義, “High Sensitivity Search for Neutrinoless Double-Beta Decay in KamLAND-Zen with Double Amount of  $^{136}\text{Xe}$ ”, 博士論文, 東北大学 (2020) .
- [18] B. von Krosigk et al., “Measurement of  $\alpha$ -particle quenching in LAB based scintillator in independent small-scale experiments”, *The European Physical Journal C* **2**, 14 (2016) , DOI: [10.1140/epjc/s10052-016-3959-2](https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-016-3959-2).
- [19] G. J. Feldman and R. D. Cousins, “Unified approach to the classical statistical analysis of small signals”, *American Physical Society* (1998) , DOI: [doi.org/10.1103/PhysRevD.57.3873](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.57.3873).