

修士論文

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

Development of High Light-yield Liquid Scintillator for
Scintillation Balloon in KamLAND2-Zen

東北大学大学院理学研究科

物理学専攻

和田 佳樹

令和元年

概要

素粒子・原子核物理において、ニュートリノのマヨラナ性の検証が大きな課題の1つである。マヨラナ性の実験的検証の唯一の方法がニュートリノレス二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) 事象の観測である。我々が行なっている KamLAND-Zen 実験は、二重ベータ崩壊核 ^{136}Xe を使用している $0\nu\beta\beta$ 事象探索実験であり、 ^{136}Xe を溶解した液体シンチレータを封入したミニバルーンを KamLAND 検出器に導入し、シンチレーション光を光電子増倍管で検出する。現在までにニュートリノ有効質量に対して最も厳しい制限を課しているが、 $0\nu\beta\beta$ 事象は観測できていない。このため、感度向上を目指す将来実験 KamLAND2-Zen が計画されている。

KamLAND2-Zen 実験では、感度向上とバックグラウンド低減を目的として、大光量液体シンチレータや発光性バルーンを使用することが計画されている。先行研究から、エネルギー分解能向上のため使用する大光量液体シンチレータの候補はリニアアルキルベンゼン (LAB-LS)、 ^{214}Bi の崩壊事象の識別確率を上げるため使用する発光性ミニバルーン素材の候補は、ポリエチレンナフタレート (PEN) フィルムが挙げられている。発光性バルーンは液体シンチレータを封入するため、液体シンチレータ耐性が必要である。先行研究より PEN フィルムには透過率に問題があったため、発光性バルーンを使用するには波長変換剤 Bis-MSB を液体シンチレータに溶解することが必要となる。

本研究では、先行研究で報告されていなかった PEN フィルムの LAB-LS 耐性、ならびに液体シンチレータ中の光の伝搬を再現するために必要なパラメータである、波長変換剤を溶解した液体シンチレータの光学的性質の評価を行なった。

PEN フィルムの LAB-LS 耐性は、液体シンチレータに PEN フィルムを浸したサンプルを加速劣化試験を行い、サンプルの透過率測定を行うことで評価した。透過率測定の誤差 0.3% 以内で一致していることから、PEN フィルムの溶け出しはなく LAB-LS 耐性を持つことが確認できた。

液体シンチレータの光学的性質として、発光量や透過率、光の散乱などが挙げられる。発光量や透過率の測定結果から、Bis-MSB がこれらの性質を悪くするような影響がないことを確認した。また、光の散乱測定では、測定系を確立した。窒素/色素レーザーを使い液体シンチレータ容器内に光を入射させ、散乱光と透過光を光電子増倍管で検出する。窒素/色素レーザーは、色素を変えることで異なる波長の光を射出することができる。本研究では、液体シンチレータとして LAB-LS+Bis-MSB、入射光の波長として $\lambda = 425, 437, 470$ nm を用いて、光の散乱測定を行なった。理論で予測されている $(1 + \cos^2\theta)$ の角度依存性を、各波長において大まかではあるが確認することができた。また、この角度依存性から求められる散乱長は、理論上 λ^4 の波長依存性を持っており、実験で得られた散乱長が λ^4 の波長依存性を満たすことを確認した。

目次

第 1 章	序論	1
第 2 章	ニュートリノ物理	2
2.1	ニュートリノ	2
2.2	ニュートリノ振動	3
2.2.1	太陽ニュートリノ問題	3
2.2.2	大気ニュートリノ異常	3
2.2.3	ニュートリノ振動	4
2.3	ニュートリノ質量	5
2.3.1	質量階層構造	5
2.3.2	マヨラナ性	6
2.4	二重ベータ崩壊	7
2.4.1	二重ベータ崩壊	7
2.4.2	ニュートリノレス二重ベータ崩壊	8
2.5	$0\nu\beta\beta$ 事象探索実験の現状	9
第 3 章	KamLAND と KamLAND-Zen 実験	11
3.1	KamLAND	11
3.1.1	外部検出器	11
3.1.2	内部検出器	12
3.1.3	ニュートリノ検出原理	13
3.2	KamLAND-Zen 実験	15
3.2.1	二重ベータ崩壊核 ^{136}Xe	15
3.2.2	キセノン含有液体シンチレータ	16
3.2.3	ナイロン製ミニバルーン	17
3.2.4	KamLAND-Zen 実験のバックグラウンド	17
3.2.5	KamLAND-Zen 実験の成果	18
3.3	将来実験 KamLAND2-Zen 実験	19
第 4 章	発光性バルーン	23
4.1	発光性バルーンフィルムへの要求項目	23
4.1.1	シンチレータとしての要求項目	23

4.1.2	ミニバルーンとしての要求項目	24
4.2	先行研究による PEN の評価	25
4.3	波長変換剤	26
4.3.1	発光波長測定	26
4.4	LAB-LS 耐性	28
4.4.1	測定方法	28
4.4.2	測定結果	28
第 5 章	波長変換剤含有液体シンチレータの評価	31
5.1	液体シンチレータの光学的性質	31
5.2	発光量測定	31
5.2.1	測定原理	31
5.2.2	測定方法	32
5.2.3	測定結果	33
5.3	9 cm 透過率測定	34
5.3.1	測定原理	34
5.3.2	測定方法	35
5.3.3	測定結果	35
5.4	屈折率測定	36
5.4.1	測定原理	36
5.4.2	測定方法	37
5.4.3	測定結果	37
5.5	光の散乱測定	38
5.5.1	光の散乱	38
5.5.2	吸収・再発光	41
5.5.3	セットアップ	42
5.5.4	実験装置	44
5.5.5	解析方法	56
5.5.6	測定結果	60
第 6 章	結論と今後の課題	65
6.1	結論	65
6.2	今後の展望	66
参考文献		68

目次

2.1	標準理論における素粒子の分類	3
2.2	二重ベータ崩壊における電子のエネルギースペクトル	9
2.3	二重ベータ崩壊のファインマンダイアグラム	9
3.1	KamLAND 検出器	11
3.2	光電子増倍管の構造部	12
3.3	ニュートリノと電子の弾性散乱	14
3.4	逆ベータ崩壊による反電子ニュートリノ検出の原理	15
3.5	KamLAND-Zen 検出器の概要図	16
3.6	^{10}C 崩壊イベント	18
3.7	^{238}U 系列の崩壊過程	18
3.8	KamLAND-Zen400 実験の結果	19
3.9	KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル	20
3.10	KamLAND2-Zen 実験の概要図	22
4.1	KamLAND-LS の発光スペクトルと透過率、17-inchPMT の量子効率の波長依存性	24
4.2	PPO と Bis-MSB の吸収・発光スペクトル	26
4.3	分光蛍光光度計の概念図	27
4.4	各液体シンチレータの発光波長と PEN フィルムの透過率	27
4.5	実質 1 年間経過した Bis-MSB なしサンプルの 9 cm 透過率	29
4.6	実質 1 年間経過した Bis-MSB ありサンプルの 9 cm 透過率	29
4.7	実質 2 年間経過した Bis-MSB なしサンプルの 9 cm 透過率	30
4.8	実質 2 年間経過した Bis-MSB ありサンプルの 9 cm 透過率	30
5.1	発光量測定の方法図	32
5.2	液体シンチレータの発光量測定で得られた電荷分布図	33
5.3	分光光度計の概念図	34
5.4	透過率測定の方法図	34
5.5	各液体シンチレータの 9 cm 透過率	36
5.6	LAB-LS+Bis-MSB の 6.5 m 透過率	36
5.7	臨界角法の方法図	37
5.8	LAB-LS+Bis-MSB の屈折率測定	38

5.9	レイリー散乱の角度分布と偏光特性	39
5.10	ミー散乱の角度分布	42
5.11	LAB-LS+Bis-MSB の吸収スペクトルと発光スペクトル	42
5.12	光の散乱測定におけるセットアップの概要図	43
5.13	光の散乱測定におけるセットアップ	44
5.14	光の散乱測定における波形取得	45
5.15	色素モジュールの概要図	45
5.16	使用した色素の発光スペクトル	47
5.17	波形の電荷量 (ADC 値) の求め方	49
5.18	散乱用 PMT のチャンネルでのキャリブレーション結果	49
5.19	透過用 PMT のチャンネルでのキャリブレーション結果	50
5.20	印加電圧・波高値と計数率の関係	51
5.21	純化装置の概要図	52
5.22	液体シンチレータ容器の概要図	53
5.23	液体シンチレータ容器に設置した窓の概要図	53
5.24	各 ND フィルターの透過率	54
5.25	使用した PMT の応答スペクトル	55
5.26	液体シンチレータでの散乱の概要図	57
5.27	散乱用 PMT の前に設置したスリットの位置	58
5.28	散乱体積の変化	59
5.29	光の散乱の PMT による測定結果	60
5.30	光の散乱の偏光成分	61
5.31	光の散乱確率の角度依存性 波長 425 nm	62
5.32	光の散乱確率の角度依存性 波長 437 nm	63
5.33	光の散乱確率の角度依存性 波長 470 nm	63
5.34	散乱長の波長依存性	64

表目次

2.1	$2\nu\beta\beta$ が観測された放射性核種	8
3.1	バッファオイルの組成	13
3.2	KamLAND-LS の組成	13
3.3	Xe-LS の組成	16
3.4	LAB-LS の組成	20
4.1	ミニバルーン素材への放射性不純物含有量の要求値	25
4.2	PEN フィルムの実験結果	25
4.3	加速劣化試験のサンプル	28
5.1	各液体シンチレータの発光量測定の結果	33
5.2	屈折率のフィット結果	38
5.3	散乱長計算に必要なパラメーター	41
5.4	窒素/色素レーザーのカタログ性能	46
5.5	使用した色素の主な性能	47
5.6	レーザー光の偏光特性	47
5.7	Waveform digitizer の性能	48
5.8	Waveform digitizer のキャリブレーション結果	50
5.9	各 ND フィルターの透過率	54
5.10	使用した PMT のカタログ性能	55
5.11	散乱用と透過用 PMT を入れ替え前後の測定結果	56
5.12	偏光成分の同時フィット結果	61
5.13	各波長における散乱長の結果	64
6.1	本研究で得られた散乱長の結果	66

第1章

序論

ニュートリノは素粒子の一つであり、ニュートリノの予言から約 80 年、ニュートリノの発見から約 50 年ほど経過している。ニュートリノは標準模型に従うため質量を持たないと考えられていたが、ニュートリノ振動現象の発見により、ニュートリノが微小ではあるが質量を持つことが分かった。しかし現在においても、ニュートリノの絶対質量や質量階層構造、マヨラナ性など未解決な問題が多く、世界中でこれらの性質の検証実験が行われている。

我々が行なっている KamLAND-Zen 実験はニュートリノのマヨラナ性を検証するために、 ^{136}Xe を用いたニュートリノレス二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) 事象探索実験を行なっている。 ^{136}Xe を溶解した液体シンチレータを封入したミニバルーンを、KamLAND 検出器中心に設置している。 ^{136}Xe を約 400 kg 使用した KamLAND-Zen 400 実験では、 $0\nu\beta\beta$ 事象の半減期やニュートリノ有効質量に対して、最も厳しい制限を課している。また実験感度を向上させるため、 ^{136}Xe を約 800 kg 使用した KamLAND-Zen 800 実験が、現在データ取得中である。

KamLAND-Zen 400 実験の主なバックグラウンドとして、 ^{136}Xe の二重ベータ崩壊 ($2\nu\beta\beta$) 事象、原子核破砕で生じる ^{10}C 、 ^{214}Bi の崩壊事象などが挙げられる。これらのバックグラウンドを低減させるためには、検出器の感度向上が求められる。将来実験 KamLAND2-Zen 実験では、大光量液体シンチレータや発光性バルーンを使用することで感度向上とバックグラウンド低減を目指す。

発光性バルーンは、先行研究により素材の候補が決まっている。しかし、この素材には透過率に問題があるため、発光性バルーンを使用するときには液体シンチレータに波長変換剤を溶解させることが必要になる。発光性バルーンは内部に液体シンチレータを封入するため、液体シンチレータ耐性が要求される。また、液体シンチレータの光学的性質は、液体シンチレータ中の光の伝搬をシミュレーションによって再現する際に、必要不可欠なパラメーターである。本研究の目的は、発光性バルーン素材が将来実験で使用する液体シンチレータ耐性を持つことの評価、ならびに、将来実験をフルシミュレーションする際に必要なパラメーターを得るために、波長変換剤含有液体シンチレータの光学的性質を評価することである。

本論文では、第 2 章ではニュートリノ物理に関する歴史や理論・実験について述べる。第 3 章では我々が使用している KamLAND 検出器や、現在行われている KamLAND-Zen 実験について述べる。また、本研究は将来実験のための研究であることから、KamLAND2-Zen 実験についての改良点を述べる。第 4 章では発光性バルーンについて、第 5 章では発光性バルーンを使用するときに必要な波長変換剤含有液体シンチレータの評価について述べる。第 6 章に本研究の結論と今後の展望について述べていく。

第2章

ニュートリノ物理

2.1 ニュートリノ

素粒子とは、物質を構成する最小単位の粒子である。素粒子が相互作用を及ぼし合うことによって、様々な物理現象が起こる。基本相互作用として、重力相互作用、強い相互作用、弱い相互作用、電磁相互作用の4つが挙げられる。これらのうち重力相互作用以外の3つの相互作用に基づいて、素粒子の性質や反応を記述する理論が、標準理論である。

図 2.1 のように、我々の世界はフェルミオンまたはボソンに分類される 17 種類の素粒子で構成される。素粒子はスピンによって、整数スピンを持ち力を媒介する粒子であるボソン、半整数スピンを持ち物質を構成する粒子であるフェルミオンに分類される。さらにフェルミオンは相互作用の種類に応じて、クォークとレプトンに分けられる。ニュートリノはレプトンの一種であり、電氣的に中性な粒子である。フェルミオンは3つの世代が存在しており、それぞれ電子ニュートリノ ν_e 、ミューニュートリノ ν_μ 、タウニュートリノ ν_τ と呼ぶ。

ニュートリノは、放射性崩壊の一種である β 崩壊の研究から予言された。放射性崩壊のうち α 崩壊と γ 崩壊は、崩壊によって生じる α 線、 γ 線のエネルギー分布が離散的であった。しかし、 β 崩壊によって生じる β 線のエネルギー分布は連続的であることから、この不可解なエネルギー分布について研究がなされた。1930 年にパウリがエネルギー保存が成立するように、電氣的に中性な未知の粒子が β 崩壊によって生成される、という仮説を公表した。この仮説をフェルミが「 β 崩壊では電子と陽子の他に、中性の粒子が放出される」と発展させた。この中性粒子がニュートリノである。

ニュートリノは予言されていたが、ニュートリノは弱い相互作用しかうけないため観測が困難であった。ニュートリノは 1956 年に初めて観測に成功し、仮説が実証された [1]。ライネスとコーワンは、塩化カドミウム CdCl_2 を溶かした水と液体シンチレータを層状に重ねた検出器を用いた。原子炉から飛来した反電子ニュートリノを、式 (2.1) で示した逆ベータ崩壊で生じる中性子と陽電子を遅延同時計測によって識別した。その後の測定で、弱い相互作用におけるパリティ非保存、ニュートリノ・反ニュートリノのヘリシティが全て左巻き・右巻きであることがわかった。また 1968 年にミューニュートリノが [2]、2000 年にタウニュートリノが観測され [3]、3 世代のニュートリノが観測された。

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow n + e^+ \quad (2.1)$$

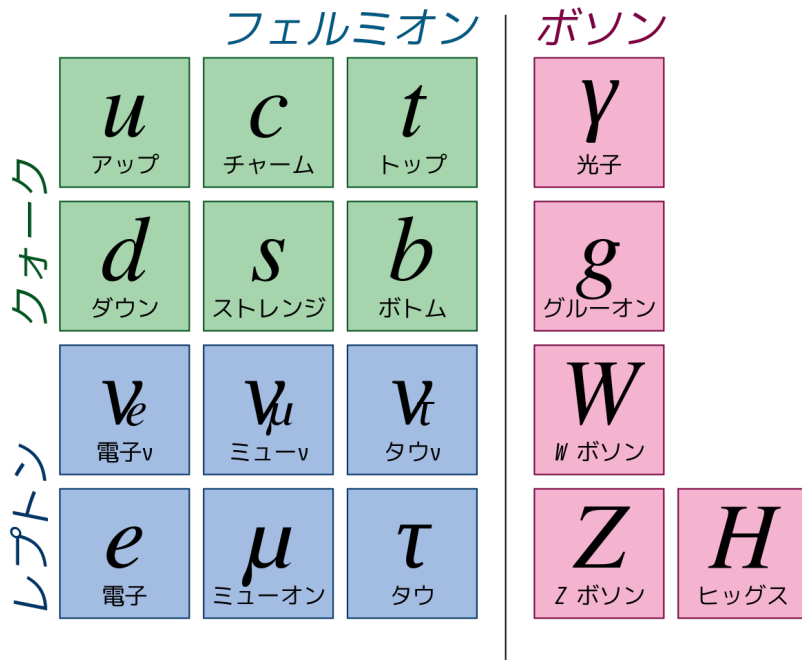


図 2.1: 標準理論における素粒子の分類

2.2 ニュートリノ振動

2.2.1 太陽ニュートリノ問題

太陽内部では、以下の式 (2.2) で表される核融合反応が起こっており、この反応によって電子ニュートリノが生成される。



このような反応を pp チェインと呼ぶ。pp チェインの核融合が進んでいくと ${}^7\text{Be}$ や ${}^8\text{B}$ が生成され、これらの反応の際にも電子ニュートリノが生成される。1968 年にホームステークス実験において、式 (2.3) に示した ${}^{37}\text{Cl}$ の逆ベータ崩壊を用いて太陽ニュートリノを初めて観測した [4]。



観測された電子ニュートリノのフラックスは、太陽標準模型によって予測されていた値の 1/3 程度であった。当初は検出器の不具合や太陽模型の再検討などが行われたが、観測値と予測値の違いは解決されなかった。このことは太陽ニュートリノ問題と呼ばれ、約 30 年間解決されなかった。

2.2.2 大気ニュートリノ異常

大気ニュートリノとは、宇宙線が空気中の原子核と衝突した際に放出されるニュートリノである。主な反応を式 (2.4)、(2.5) に示す。

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu, \quad \pi^- \rightarrow \mu^- + \bar{\nu}_\mu \quad (2.4)$$

$$\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu, \quad \mu^- \rightarrow e^- + \nu_\mu + \bar{\nu}_e \quad (2.5)$$

この反応より、観測される大気ニュートリノ事象数は $\nu_\mu : \nu_e = 2 : 1$ となるはずである。しかし、大型水チェレンコフ光検出器である Kamiokande 実験で観測された事象数は予測値と異なっており [5]、式 (2.6) のようになった。

$$\frac{\nu_\mu/\nu_e^{\text{observed}}}{\nu_\mu/\nu_e^{\text{expected}}} < 1 \quad (2.6)$$

これは ν_μ が減少している、もしくは ν_e が増加していることを示している。この現象は他の実験においても確認され、大気ニュートリノ異常と呼ばれた。

2.2.3 ニュートリノ振動

太陽ニュートリノ問題や大気ニュートリノ異常を説明できる現象が、ニュートリノ振動である。ニュートリノ振動は、ニュートリノが質量を持つ場合のみ生じ、時間経過に伴ってフレーバーが振動変化することである。

ニュートリノのフレーバー固有状態を $|\nu_\alpha\rangle$ 、質量固有状態を $|\nu_i\rangle$ とおくと、式 (2.7) のように重ね合わせで表現される。ここで、 U は重ね合わせの成分比を表すユニタリーな混合行列である。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i} |\nu_i\rangle, \quad |\nu_i\rangle = \sum_\alpha (U^\dagger)_{i\alpha} |\nu_\alpha\rangle = \sum_\alpha U_{\alpha i}^* |\nu_\alpha\rangle \quad (2.7)$$

シュレディンガー方程式より、質量固有状態の時間変化は次のように表される。

$$|\nu_i(x, t)\rangle = e^{-iE_i t} |\nu_i(x, 0)\rangle \quad (2.8)$$

これらより、フレーバー α のニュートリノの時間変化は次のように表される。

$$|\nu_\alpha(x, t)\rangle = \sum_i U_{\alpha i} e^{-iE_i t} |\nu_i(x, 0)\rangle = \sum_{i\beta} U_{\alpha i} U_{\beta i}^* e^{i(px - E_i t)} |\nu_\beta\rangle \quad (2.9)$$

フレーバー α から β に遷移する確率 $P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta)(t)$ は式 (2.10) のように書ける。

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta)(t) &= |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(x, t) \rangle|^2 = \sum_{i,j} U_{\alpha i} U_{\alpha j}^* U_{\beta i}^* U_{\beta j} e^{-i(E_i - E_j)t} \\ &= \sum_i |U_{\alpha i} U_{\beta i}|^2 + 2 \operatorname{Re} \sum_{j>i} U_{\alpha i} U_{\alpha j}^* U_{\beta i}^* U_{\beta j} \exp\left(-i \frac{\Delta m_{ij}^2 L}{2E}\right) \end{aligned} \quad (2.10)$$

このとき、 $\Delta m_{ij}^2 = m_i^2 - m_j^2$ 、 $L = ct = t$ (自然単位系) を用いた。またニュートリノの質量は非常に軽く、ほぼ光速で運動するためエネルギー E_i は相対論的に

$$E_i = \sqrt{m_i^2 + p_i^2} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2p_i} \simeq E + \frac{m_i^2}{2E} \quad (2.11)$$

と表されることを用いた。ニュートリノが質量を持たない場合 $m_i = m_j = 0$ より、式 (2.10) において時間変化する項が消えてしまうため、ニュートリノ振動現象は起きない。このため、ニュートリノ振動現象を確認することができれば、ニュートリノが質量を持つことを実証できる。前述の太陽ニュートリノ問題や大気ニュートリノ異常によって、ニュートリノが有限の質量を持つことが実証された。

2 フレーバー間のニュートリノ振動

電子型とミュー型の 2 フレーバー間のニュートリノ振動を考える。混合角 θ とおくと各フレーバー固有状態は

$$|\nu_e\rangle = \cos\theta |\nu_1\rangle + \sin\theta |\nu_2\rangle \quad (2.12)$$

$$|\nu_\mu\rangle = -\sin\theta |\nu_1\rangle + \cos\theta |\nu_2\rangle \quad (2.13)$$

と書けるため、電子型からミュー型への遷移確率は式 (2.14) で表される。

$$\begin{aligned} P(\nu_e \rightarrow \nu_\mu) &= |\langle \nu_e(0) | \nu_\mu(t) \rangle|^2 = \sum_{i,j} U_{ei} U_{ej}^* U_{\mu i}^* U_{\mu j} e^{-i(E_i - E_j)t} \\ &= 2 \cos^2\theta \sin^2\theta \left[1 - \cos\left(\frac{\Delta m_{12}^2 L}{2E}\right) \right] \\ &= \sin^2 2\theta \sin^2\left(\frac{\Delta m_{12}^2 L}{4E}\right) \\ &= \sin^2 2\theta \sin^2\left(1.27 \times \frac{\Delta m_{12}^2 [\text{eV}^2] L [\text{km}]}{E [\text{GeV}]}\right) \end{aligned} \quad (2.14)$$

3 フレーバー間のニュートリノ振動

3 フレーバーの場合、混合行列 U は牧・中川・坂田行列 (MNS 行列) として式 2.15 と表される。

$$\begin{aligned} U_{MNS} &= \begin{pmatrix} U_{e1} & U_{e2} & U_{e3} \\ U_{\mu 1} & U_{\mu 2} & U_{\mu 3} \\ U_{\tau 1} & U_{\tau 2} & U_{\tau 3} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{-i\delta} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}c_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.15)$$

ここで、 θ_{ij} は混合角、 $c_{ij} = \cos\theta_{ij}$ 、 $s_{ij} = \sin\theta_{ij}$ 、 δ は CP 位相を表している。

2.3 ニュートリノ質量

2.3.1 質量階層構造

太陽ニュートリノの観測やニュートリノ振動の発見により、ニュートリノが質量を持つことがわかった。しかし、ニュートリノ振動によって示されるパラメーターは質量二乗差であり、質量自体を求めることはできない。得られた質量二乗差から、ニュートリノ質量の階層構造が以下のように 3 つに制限される。

1. 正常階層構造 (Normal Hierarchy:NH) $m_1 < m_2 \ll m_3$
2. 逆階層構造 (Inverted Hierarchy:IH) $m_3 \ll m_1 < m_2$
3. 準縮退階層構造 (Degenerate pattern) $m_1 \sim m_2 \sim m_3$

質量階層構造はニュートリノの基本的性質に関わることであり、質量階層構造を決定することは非常に重要である。しかし、現在までには決定しておらず様々な実験で検証がされている。

2.3.2 マヨラナ性

ニュートリノ振動現象の発見によって、ニュートリノが極めて小さい質量を持つことが実証された。このことより、ニュートリノがマヨラナ粒子である可能性が生じた。マヨラナ粒子とは、粒子と反粒子が同等の中性フェルミオンである。もしニュートリノがマヨラナ粒子であったならば、シーソー機構によって他のフェルミオンに比べて極めて小さい質量を持つことや、右巻きニュートリノが未発見であることが説明できる。

マヨラナ粒子

ディラック方程式は、ディラック質量 m_D を用いて、

$$(i\gamma_\mu \partial^\mu - m_D)\psi = 0 \quad (2.16)$$

となり、ラグランジアン¹⁾の質量項は

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_D &= m_D \bar{\psi}\psi \\ &= m_D ((\bar{\psi}_L + \bar{\psi}_R)(\psi_L + \psi_R)) \\ &= m_D (\bar{\psi}_L\psi_R + \bar{\psi}_R\psi_L) \end{aligned} \quad (2.17)$$

と書ける。ここでは、任意のスピンル ψ に対して $P_{L,R} = \frac{1}{2}(1 \mp \gamma_0)$ とおいた時に右巻きと左巻きのスピンルの関係が

$$\bar{\psi}_L\psi_L = \bar{\psi}P_R P_L\psi = 0 \quad \bar{\psi}_R\psi_R = 0 \quad (2.18)$$

となることを用いた。このため、ディラック質量項は右巻きと左巻きが混合している。

一方で粒子がマヨラナ性を持つ場合には、荷電共役演算子 C を用いたマヨラナ条件

$$\psi_{L,R} = (\psi_{R,L})^C \quad (2.19)$$

が粒子に課されることになる。この時のラグランジアン¹⁾の質量項は

$$\mathcal{L} = m_D (\bar{\psi}_L\psi_R + h.c) + \frac{1}{2}m_R (\bar{\psi}_L^C\psi_R + h.c) + \frac{1}{2}m_L (\bar{\psi}_R^C\psi_L + h.c) \quad (2.20)$$

と書ける。第1項はディラック質量項、第2、3項はマヨラナ質量項と呼ばれる。式(2.19)を使用すると、マヨラナ質量項は

$$\mathcal{L}_{Majorana} = \frac{1}{2}m_R (\bar{\psi}_R\psi_R + h.c) + \frac{1}{2}m_L (\bar{\psi}_L\psi_L + h.c) \quad (2.21)$$

となり、第1項が右巻きの項、第2項が左巻きの項と独立しているため、マヨラナ粒子は右巻き粒子と左巻き粒子は異なる質量を持つことができる。

シーソー機構

式 (2.20)、(2.21) よりラグランジアン¹の質量項は

$$\begin{aligned}\mathcal{L} &= m_D \bar{\psi}_L \psi_R + \frac{1}{2} m_R \bar{\psi}_R \psi_R + \frac{1}{2} m_L \bar{\psi}_L \psi_L + (h.c.) \\ &= \frac{1}{2} (\bar{\psi}_L \quad \bar{\psi}_R) \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_L \\ \psi_R \end{pmatrix} + (h.c.)\end{aligned}\quad (2.22)$$

と書くことができる。このとき、左巻きニュートリノの質量が非常に軽く ($m_L \sim 0$)、右巻きニュートリノの質量が非常に重い ($m_R \equiv M \gg m_D$) と仮定すると、質量行列 \mathcal{M} は

$$\mathcal{M} = \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \sim \begin{pmatrix} 0 & m_D \\ m_D & M \end{pmatrix}\quad (2.23)$$

のように変形することができる。この質量行列を対角化することで求められる固有値 m は以下の通り。

$$\begin{aligned}m &= \frac{1}{2} \left(M \pm \sqrt{M^2 - 4m_D^2} \right) \\ &\sim M, \frac{m_D^2}{M}\end{aligned}\quad (2.24)$$

これより、右巻きニュートリノの質量が非常に重いことを仮定すると、左巻きのニュートリノの質量が非常に軽いことが説明できるようになる。右巻きニュートリノが未だに検出されていないことを考慮すると、右巻きニュートリノの質量が非常に重いという仮定は自然である。このような機構をシーソー機構と呼ぶ。

ニュートリノがディラック粒子の場合には小さい質量を説明することは以上に難しいため、ニュートリノがマヨラナ粒子であることが有力である。これらを明らかにするためには、ニュートリノがマヨラナ粒子であることを検証することが必要である。

2.4 二重ベータ崩壊

ニュートリノがマヨラナ粒子であることを検証するには、ニュートリノレス二重ベータ崩壊事象 ($0\nu\beta\beta$) 探索実験が現状唯一の実験的方法である。通常のベータ崩壊は原子核中の中性子が陽子に崩壊する現象であり、式 (2.25) のように書ける。

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e\quad (2.25)$$

2.4.1 二重ベータ崩壊

式 (2.25) で示したベータ崩壊は、崩壊後のエネルギー準位が崩壊前に比べて高い場合や、崩壊前と崩壊後のスピン状態が大きく異なる場合には起きることができない。質量数 A と原子番号 Z が偶数のときの原子核 (偶偶核) は非常に安定しているため、通常のベータ崩壊を起こさずに式 (2.26) で表す二重ベータ崩壊 ($2\nu\beta\beta$) が起こることがある。このとき、電子のエネルギースペクトルは、 $2\nu\beta\beta$ 事象時に原子核から電子とニュートリノが放出されるため、連続分布となる。 $2\nu\beta\beta$ 事象は 10^{18} 年

以上の半減期 $T_{1/2}^{2\nu}$ を持つため、非常に稀な物理現象である。実際に $2\nu\beta\beta$ が観測された放射性核種は表 2.1 で示した 10 種類である。



表 2.1: $2\nu\beta\beta$ が観測された放射性核種 [6, 7]

放射性核種	Q 値 [keV]	$T_{1/2}^{2\nu}$ [year]	自然存在比 [%]
^{48}Ca	4272	$5.3_{-0.8}^{+1.2} \times 10^{19}$	0.187
^{76}Ge	2039	$(1.88 \pm 0.08) \times 10^{21}$	7.8
^{82}Se	2996	$(0.93 \pm 0.05) \times 10^{20}$	9.2
^{96}Zr	3348	$(2.3 \pm 0.2) \times 10^{20}$	2.8
^{100}Mo	3034	$(6.88 \pm 0.25) \times 10^{18}$	9.6
^{116}Cd	2809	$(2.69 \pm 0.09) \times 10^{19}$	7.5
^{130}Te	2527	$(7.91 \pm 0.21) \times 10^{20}$	34.5
^{136}Xe	2458	$(2.18 \pm 0.05) \times 10^{21}$	8.9
^{150}Nd	3368	$9.34_{-0.64}^{+0.67} \times 10^{18}$	5.6
^{238}U	1146	$(2.0 \pm 0.6) \times 10^{21}$	99.284

2.4.2 ニュートリノレス二重ベータ崩壊

ニュートリノレス二重ベータ崩壊は、式 (2.27) で表される通り、原子核からニュートリノが放出されない二重ベータ崩壊である。



$0\nu\beta\beta$ 事象が起こるときには、片方の核子で放出された反ニュートリノが他方の核子にニュートリノとして吸収されることで、原子核からニュートリノが放出されない。従って、ニュートリノと反ニュートリノが同等になるように、ニュートリノがマヨラナ粒子であることが $0\nu\beta\beta$ 事象には要求される。原子核からは電子のみが放出されるため、電子のエネルギースペクトルは線スペクトルとなる。しかし、検出器のエネルギー分解能が存在するため、図 2.2 のように幅を持つ。図 2.3 に $2\nu\beta\beta$ と $0\nu\beta\beta$ のファインマンダイアグラムを示す。

$0\nu\beta\beta$ 事象の崩壊率 $(T_{1/2}^{0\nu})^{-1}$ は

$$(T_{1/2}^{0\nu})^{-1} = G^{0\nu} |M_{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (2.28)$$

と書くことができる。ここで、 $G^{0\nu}$ は位相空間因子、 $M_{0\nu}$ は核行列要素、 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ はニュートリノ有効質量を用いている。位相空間因子や核行列要素は、実験で測定することができない値のため数値計算が必要になる。核行列要素は様々な中間状態があるため計算が複雑であり、複数のモデルで計算がされているが値には違いが見られる。このため、核行列要素は大きな不定性を持つことになる。

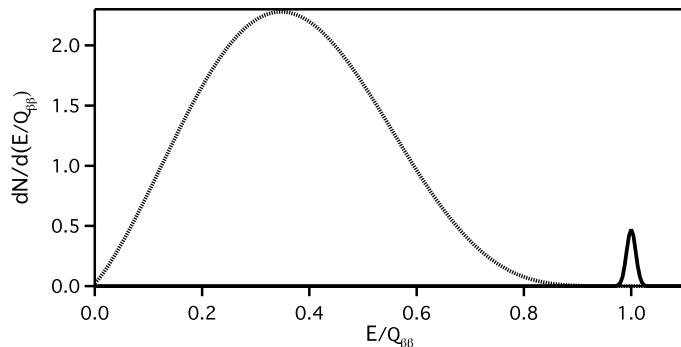


図 2.2: 二重ベータ崩壊における電子のエネルギースペクトル [8]

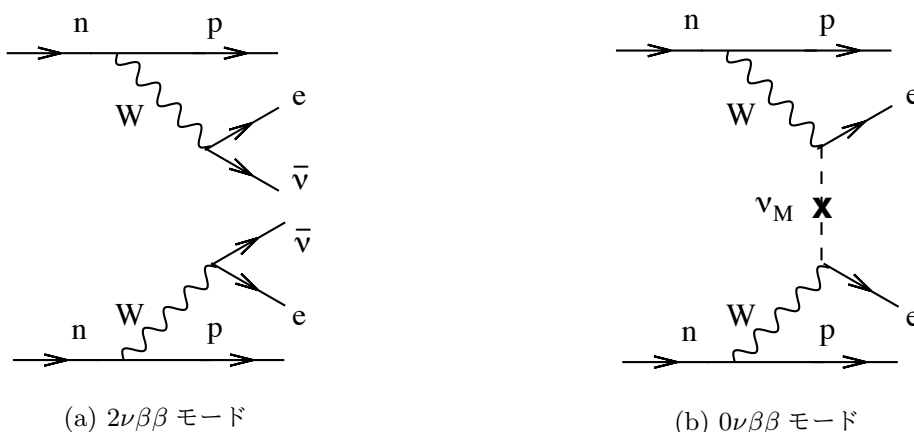


図 2.3: 二重ベータ崩壊のファインマンダイアグラム [8]

また、ニュートリノ有効質量は質量固有状態の重ね合わせで表現されるため、

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle = \left| \sum_i^3 m_i U_{ei}^2 \right| \tag{2.29}$$

と書ける。これらより、 $0\nu\beta\beta$ 事象の半減期 $T_{1/2}^{0\nu}$ を求めること、つまり $0\nu\beta\beta$ 事象を観測することができれば、ニュートリノのマヨラナ性だけでなくニュートリノ有効質量に対しても大きな情報が得られる。また、ニュートリノ有効質量が質量固有状態の重ね合わせであることで質量階層構造によって値が変化することから、質量階層構造に対しても情報を得ることができる。核行列要素が大きな不定性を持つことから、ニュートリノ有効質量に対しては幅を持った制限をかけることとなる。

2.5 $0\nu\beta\beta$ 事象探索実験の現状

後述する KamLAND-Zen 実験以外にも、 $2\nu\beta\beta$ 事象を起こすことが観測された放射性核種を用いて $0\nu\beta\beta$ 事象探索実験を行っているグループについて紹介していく。

CUORE [9]

The Cryogenic Underground Laboratory for Rare Events(CUORE) 実験は、イタリアのグランサッソ国立研究所で行われている $0\nu\beta\beta$ 事象探索実験である。 $2\nu\beta\beta$ を起こす放射性核種として

^{130}Te を使用している。CUORE では約 10 mK の極低温ボロメータとして、 TeO_2 結晶を使用している。この検出器の特徴としては、FWHM で約 7 keV と高いエネルギー分解能を持つことが挙げられる。 $5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$ の TeO_2 結晶を 988 個用いた実験の結果として、

$$T_{1/2}^{0\nu} > 3.2 \times 10^{25} \text{ year (90\%C.L.)} \quad (2.30)$$

という制限を与えている。この結果より、ニュートリノ有効質量に対しては

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle < 75 - 350 \text{ meV} \quad (2.31)$$

という上限を与えた。

GERDA [10]

GERmanium Detector Array(GERDA) 実験も、イタリアのグランサッソ国立研究所で行われている $0\nu\beta\beta$ 事象探索実験である。 $2\nu\beta\beta$ を起こす放射性核種として ^{76}Ge を使用している。GERDA 実験では、High Purity Ge(HPGe) 検出器を使用しており、 ^{76}Ge が約 85% 以上まで濃縮されている。HPGe は液体アルゴンで覆われており、液体アルゴンが検出器を冷やすことやシールドの役割を果たしている。これまでの結果として、

$$T_{1/2}^{0\nu} > 9.0 \times 10^{25} \text{ year (90\%C.L.)} \quad (2.32)$$

という制限を半減期に与えている。

EXO-200 [11]

Enriched Xenon Observatory(EXO) 実験は、アメリカの Waste Isolation Pilot Plant (WIPP) で行われている $0\nu\beta\beta$ 事象探索実験である。 $2\nu\beta\beta$ を起こす放射性核種として、KamLAND-Zen 実験と同様に ^{136}Xe を使用している。しかし、EXO 実験では気体キセノンではなく、液体キセノンを使用している。検出器には Time Projection Chamber(TPC) を使用しており、飛跡検出することができる。また、液体キセノン自体もシンチレーション光を発光するため、飛跡検出とシンチレーション光検出を組み合わせることで、エネルギー分解能が良くなる。これまでの結果として、

$$T_{1/2}^{0\nu} > 3.5 \times 10^{25} \text{ year (90\%C.L.)} \quad (2.33)$$

という制限を与えている。この結果より、ニュートリノ有効質量に対しては

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle < 93 - 286 \text{ meV} \quad (2.34)$$

という上限を与えた。

第3章

KamLAND と KamLAND-Zen 実験

3.1 KamLAND

KamLAND(**Kamioka Liquid scintillator Anti-Neutrino Detector**) は岐阜県神岡鉱山内の Kamiokande 跡地に建設された反電子ニュートリノ検出器である。池ノ山山頂より地下 1000 m に検出器が設置されているため、ニュートリノ観測のバックグラウンドとなる宇宙線フラックスを、地上と比べて 10^{-5} ほど減らしている。図 3.1 に KamLAND 検出器を示す。

KamLAND 検出器は、高さ 20 m、直径 20 m の円筒型タンクとその内部に設置された直径 18 m の球形ステンレスタンクで構成されている。検出器は大きく外部検出器と内部検出器の 2 種類に分けることができる。

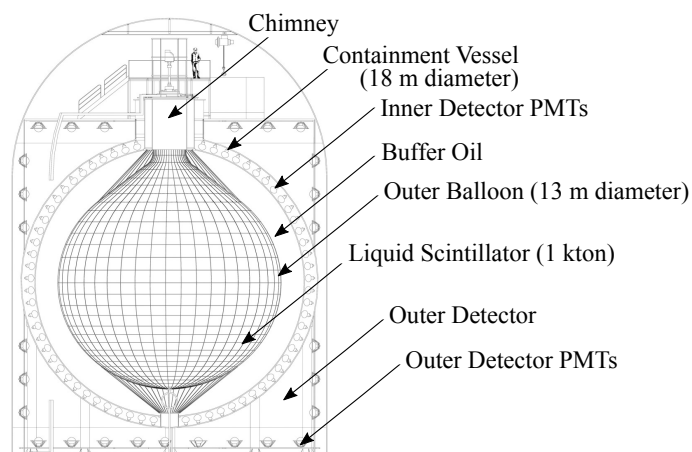


図 3.1: KamLAND 検出器

3.1.1 外部検出器

円筒形タンクと球形ステンレスタンクの間が約 3.2 kton の純水で満たされている部分を外部検出器 (Outer detector : OD) と呼ぶ。大量の純水によって、外部からくる γ 線や岩盤で生成される中性子を吸収する。また外部検出器に光電子増倍管を設置することで、宇宙線ミューオンによるチェレンコフ光を検出し、バックグラウンドと他の物理現象を区別することができる。

3.1.2 内部検出器

球形ステンレスタンク内部を内部検出器 (Inner Detector : ID) と呼ぶ。タンク内部は外側からアクリルパネルとナイロンバルーンで区切られており、タンク内壁には光電子増倍管が取り付けられている。バルーンによってバッファオイルと液体シンチレータが分けられている。液体シンチレータがニュートリノと反応しシンチレーション光を発光し、光は光電子増倍管によって検出される。

光電子増倍管

光電子増倍管 (PhotoMultiplier Tube : PMT) はシンチレーション光やチェレンコフ光などの微弱な光信号を電気信号に変換して検出する光検出器である。以下の過程により PMT は光を検出する。

1. 入射した光子を光電面で、光電子に変換。(光電効果)
2. 光電子を収束電極で収束・加速し、高電圧がかけられたダイノードで加速・衝突を繰り返すことで電子が増幅される。
3. 増幅された電子を陽極から取り出し、電気信号へと変換する。

OD には円筒型タンク内壁に 225 本の 20-inch PMT が、ID にはステンレスタンク内壁に 554 本の 20-inch PMT と 1325 本の 17-inch PMT が設置されている。20-inch PMT は Kamiokande 実験で使用されていたもの耐油加工しており、長期間の使用に信頼性が持たれているベネチアン・ブラインド型のダイノードである。一方、17-inch PMT は KamLAND 実験用に開発されており、時間分解能や線型性が優れたボックス・アンド・ライン型のダイノードである。図 3.2 に光電子増倍管の構造を示す。

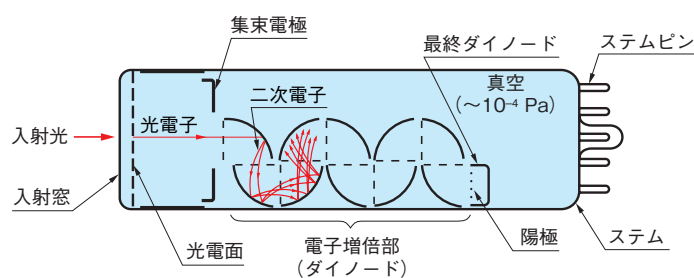


図 3.2: 光電子増倍管の構造 [12]

バッファオイル

バッファオイルは球形タンク内部とバルーン外部の間を満たしている。表 3.1 にバッファオイルの組成を示す。バッファオイルの役割として、密度を調整することでバルーン位置を安定させる、検出器外部または球形タンクや PMT に含まれる放射性不純物からの放射線による発光を防ぐ、シンチレーション光を減衰させずに PMT に入射させるなどが挙げられる。このためバッファオイルには、発光しないことや液体シンチレータと同程度の高透過率、屈折率が求められる。

表 3.1: バッファオイルの組成

成分	組成式	密度 [g/cm ³]	組成割合
ドデカン (N-12)	C ₁₂ H ₁₆	0.749	53%
イソパラフィン	C _n H _{n+12}	0.795	47%
バッファオイル	-	0.771	-

バルーン

バルーンはバッファオイルと液体シンチレータを区別しており、透過率や強度保持のためにナイロン 3 層と EVOH2 層の計 5 層のフィルムから形成されている。

液体シンチレータ

液体シンチレータ (Liquid Scintillator : LS) は、放射線で励起されて蛍光を発する液体であり、一般的に有機溶媒と発光剤や波長変換剤などの溶質から構成される。LS による発光機構を以下に記す。

1. 放射線によって溶媒分子が励起される。
2. 溶媒分子が脱励起し、1 次シンチレーション光が放出される。
3. 1 次シンチレーション光が溶質分子に吸収され、溶質分子が励起される。
4. 溶質分子が脱励起し、2 次シンチレーション光が放出される。溶質が n 種類の場合、3. と 4. を繰り返し、最終的に n 次シンチレーション光が放出される。

KamLAND では表 3.2 で構成される LS(KamLAND-LS) を用いている。ドデカン (N-12) が有機溶媒であり 1 次シンチレーション光を放出し、1,2,4-トリメチルベンゼン (PC) がミネラルオイルとして密度調整や透過率低下を防ぐ役割を持つ。また、発光剤として 2,2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO) が添加されており、2 次シンチレーション光を放出する。

表 3.2: KamLAND-LS の組成

成分	組成式	密度 [g/cm ³]	組成割合
ドデカン (N-12)	C ₁₂ H ₂₆	0.749	80%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C ₉ H ₁₂	0.795	20%
2,2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	C ₁₅ H ₁₁ NO	-	1.36 g/L
KamLAND-LS	-	0.771	-

3.1.3 ニュートリノ検出原理

液体シンチレータはγ線や荷電粒子と反応してシンチレーション光を放出するが、ニュートリノは電気的に中性粒子であるため溶媒分子を励起させることができない。ニュートリノが液体シンチレータ中の構成分子と反応した際に放出されるγ線や荷電粒子が、液体シンチレータを発光させる。

ニュートリノと反ニュートリノでは、異なる反応によってシンチレーション光が放出される。

ニュートリノ検出

ニュートリノは、液体シンチレータ中の電子と弾性散乱することで検出される。この反応は、電子ニュートリノ、ミューニュートリノ、タウニュートリノの 3 世代全てで起こる。反応を式 (3.1) に記す。

$$\nu_{\alpha} + e^{-} \rightarrow \nu_{\alpha} + e^{-} \quad (\alpha = e, \mu, \tau) \quad (3.1)$$

電子との弾性散乱には、中性カレント反応と荷電カレント反応との 2 種類存在する。2 つの反応のファインマン図を図 3.3 に示す。中性カレント反応は 3 世代全てで、荷電カレント反応は電子ニュートリノのみで起こる。このことから電子との弾性散乱反応断面積は、ミューニュートリノとタウニュートリノに比べて、電子ニュートリノは大きい。

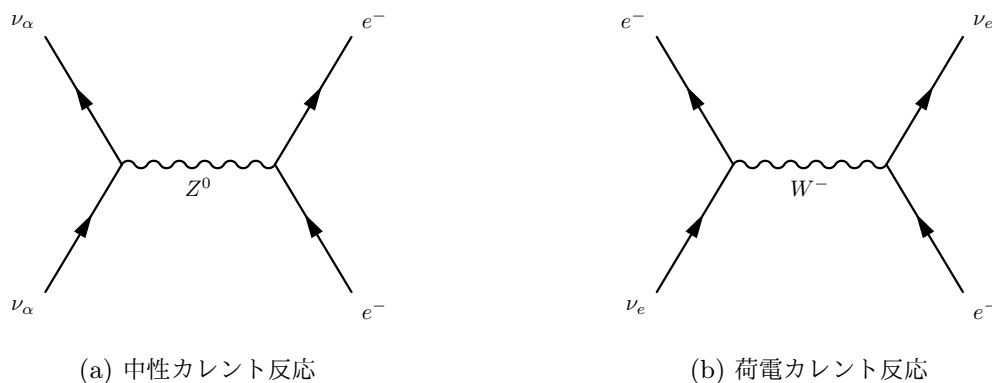


図 3.3: ニュートリノと電子の弾性散乱

反ニュートリノ検出

反電子ニュートリノは液体シンチレータ中の陽子と逆ベータ崩壊を起こし、生成物である中性子と陽電子を遅延同時計測することで検出される。反応を式 (3.2) に記す。

$$\bar{\nu}_e + p \rightarrow n + e^{+} \quad (3.2)$$

陽電子は数 ns で電子と対消滅を起こし、511 keV の γ 線を 2 本放出する。一方、中性子は 210 μ s の寿命で陽子に捕獲され、2.2 MeV の γ 線を放出する。陽電子と対消滅の γ 線を先発信号、陽子の中性子捕獲による 2.2 MeV の γ 線を後発信号として、遅延同時計測を行う。図 3.4 に逆ベータ崩壊による反電子ニュートリノ検出の原理を示す。

観測される反電子ニュートリノのエネルギーについて考える。逆ベータ崩壊のエネルギー・運動量保存より式 (3.3) が求まり、反電子ニュートリノのエネルギーは検出した先発信号のエネルギーから得られる。このとき、 $m_e \ll m_n$ より反応の際には中性子の運動エネルギー $T_n \simeq 0$ と近似することができる。

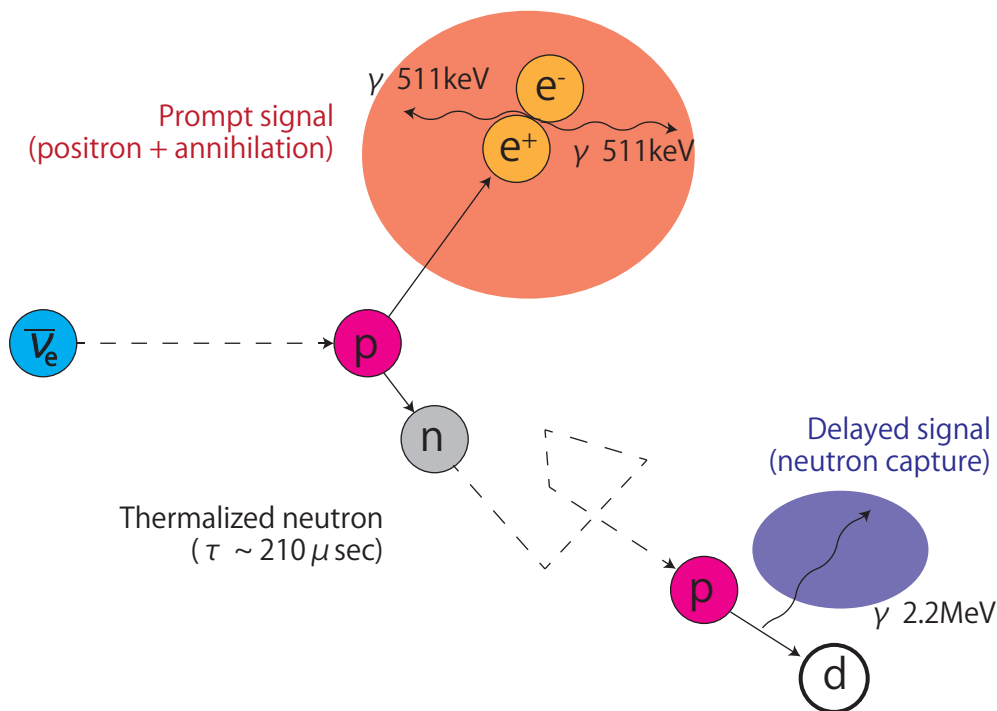


図 3.4: 逆ベータ崩壊による反電子ニュートリノ検出の原理

$$\begin{aligned}
 E_{\bar{\nu}_e} + m_p &= (T_n + m_n) + (T_{e^+} + m_e) \\
 \Leftrightarrow E_{\bar{\nu}_e} &\simeq (T_{e^+} + 2m_e) + (m_n - m_p - m_e) \\
 &= E_{\text{Prompt}} + 0.783 \text{ MeV}
 \end{aligned}
 \tag{3.3}$$

3.2 KamLAND-Zen 実験

KamLAND-Zen (**Z**ero **N**eutrino double beta decay seach) 実験は KamLAND を用いて、二重ベータ崩壊核 ^{136}Xe による $0\nu\beta\beta$ 探索実験である。 ^{136}Xe を溶解した液体シンチレータをナイロン製ミニバルーンに封入し、ミニバルーンを KamLAND 検出器中心にロープで保持されている。KamLAND-Zen 検出器の概要図を図 3.5 に示す。

3.2.1 二重ベータ崩壊核 ^{136}Xe

KamLAND-Zen 実験では、数ある二重ベータ崩壊核の中でも ^{136}Xe を使用している。 ^{136}Xe を使用している理由として、液体シンチレータに溶かしても色つかないこと、液体シンチレータに対して最大約 3.2 wt.% まで溶解できること、遠心分離法により ^{136}Xe が比較的容易に濃縮できること、安定な希ガスのため溶解後の再利用・純化ができることなどが挙げられる。また ^{136}Xe の Q 値は 2.458 MeV と多くの環境放射線のエネルギーよりも高いため、 $0\nu\beta\beta$ 信号を低バックグラウンドで観測することが可能である。

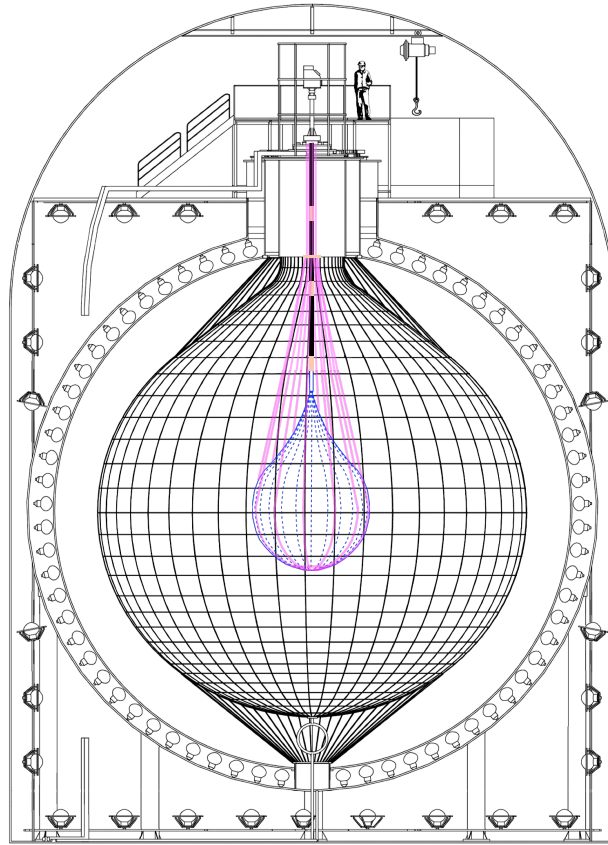


図 3.5: KamLAND-Zen 検出器の概要図

3.2.2 キセノン含有液体シンチレータ

^{136}Xe を溶解した液体シンチレータ (Xe-LS) の組成を表 3.3 に記す。 ^{136}Xe による消光効果があるため、KamLAND-LS に比べて PPO がより多く添加されている。また、PPO 濃度の違いや ^{136}Xe の溶解によって Xe-LS の密度が大きくなることを防ぐために、ドデカンよりも軽いデカンを使用している。

表 3.3: Xe-LS の組成

成分	組成式	密度 [g/cm ³]	組成割合
デカン (N-10)	C ₁₀ H ₂₂	0.735	82.3%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C ₉ H ₁₂	0.795	17.7%
2,2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	C ₁₅ H ₁₁ NO	-	2.7 g/L
キセノン 136(^{136}Xe)	-	-	3.2 wt%
Xe-LS	-	0.777	-

3.2.3 ナイロン製ミニバルーン

Xe-LS を封入し、KamLAND 検出器中心部に保持するための容器である。液体シンチレータの耐性、光透過率、放射性不純物含有量などの条件を満たした、ナイロンフィルムをミニバルーン製作に使用している。厚さ $25 \mu\text{m}$ のナイロンフィルムを熱溶着することで、直径 3.08 m の零型のミニバルーンを製作する。ナイロンフィルムの切り出しや洗浄、熱溶着はクリーンルーム内で行なっており、極低バックグラウンドを実現している。

3.2.4 KamLAND-Zen 実験のバックグラウンド

KamLAND-Zen 実験における、 $0\nu\beta\beta$ の Q 値 2.46 MeV 付近に影響する代表的なバックグラウンドを以下に記す。

^{136}Xe の $2\nu\beta\beta$

二重ベータ崩壊で放出される電子のエネルギースペクトルは、 $0\nu\beta\beta$ では Q 値の線スペクトルになるが、 $2\nu\beta\beta$ ではニュートリノも放出されるため最大エネルギーが Q 値となる連続スペクトルとなる。理想的なエネルギー・位置分解能の検出器ならば、これらの信号は分離することができる。しかし、実際の検出器のエネルギー分解能は有限であるため、 $0\nu\beta\beta$ のスペクトルは広がりを持つことになる。このため、 $0\nu\beta\beta$ のスペクトルと $2\nu\beta\beta$ のスペクトルが重なってしまい、 $2\nu\beta\beta$ がバックグラウンドとなる。このバックグラウンドを低減するためには検出器のエネルギー分解能を向上する必要があり、将来実験が計画されている。

原子核破碎で生じる ^{10}C

検出器に高エネルギー宇宙線ミューオンが飛来すると、液体シンチレータ中の ^{12}C の原子核が破碎され、 ^{10}C が生成される。KamLAND では $21.1 \pm 1.8 \text{ events/day/kton}$ のレートで生成されている。 ^{10}C は 27.8 sec で β^+ 崩壊を起こし、Q 値 3.65 MeV であるため $0\nu\beta\beta$ のバックグラウンドとなる。 ^{10}C 崩壊イベントについて図 3.6 に示す。 ^{10}C 生成と同時に 90% の確率で中性子が生成されるため、飛来したミューオンによる発光、陽子の中性子捕獲による発光、 ^{10}C 崩壊の発光を遅延同時計測することで、 ^{10}C 事象を識別する。

^{214}Bi の崩壊事象

^{214}Bi は ^{238}U 系列の崩壊娘核であり、Xe-LS やミニバルーン中に混入・付着している。 ^{214}Bi は半減期 19.9 min で β^- 崩壊を起こし、Q 値 3.27 MeV であるため $0\nu\beta\beta$ のバックグラウンドとなる。図 3.7 に ^{238}U 系列の崩壊過程を示す。 ^{214}Bi は β^- 崩壊後、娘核 ^{214}Po が生成される。 ^{214}Po は半減期 $164 \mu\text{sec}$ で α 崩壊を起こす。このため、KamLAND-Zen 実験では、 ^{214}Bi - ^{214}Po の連続崩壊事象を遅延同時計測することで ^{214}Bi 事象を識別する。液体シンチレータ中の ^{214}Bi は 99.5% の効率で識別することができる。しかしミニバルーン付近の ^{214}Bi は、 ^{214}Po 崩壊による α 線がミニバルーン透過時にエネルギーを失うことで検出が難しくなるため、識別効率が下がる。KamLAND-Zen では ^{214}Bi のバックグラウンドを考慮して、解析の有効体積からミニバルーン付近を除外していた。そのため ^{214}Bi を低減することができれば、有効体積の増加につながる。

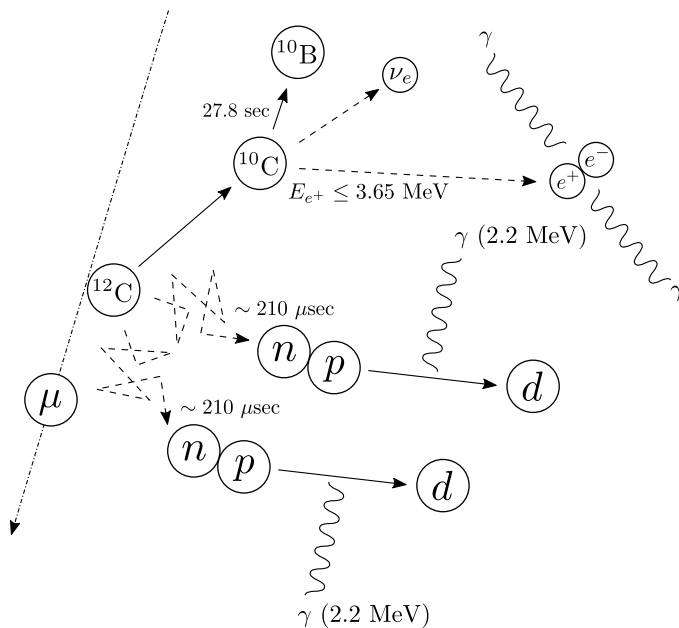


図 3.6: ^{10}C 崩壊イベント

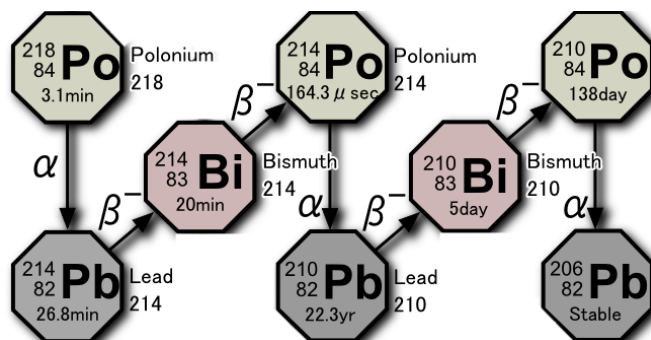


図 3.7: ^{238}U 系列の崩壊過程

3.2.5 KamLAND-Zen 実験の成果

KamLAND-Zen 400 実験

2011 年 10 月から 2015 年 10 月までの実験期間を、 ^{136}Xe を約 400 kg 溶解したことから KamLAND-Zen 400 実験と呼ぶ。2012 年 6 月までの期間を 1st phase、2013 年からの期間を 2nd phase と呼ぶ。1st phase では、予期していなかった $^{110\text{m}}\text{Ag}$ が混入していることがわかり、信号領域が $0\nu\beta\beta$ と重なるため、重大なバックグラウンドとなった。濾過作業を 2012 年 2 月から始めたが、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ を除去することができなかった。そのため 1st phase と 2nd phase の間の期間に、蒸留や液液抽出を行うことで液体シンチレータの純化を行なった。1st phase と 2nd phase とのデータを組み合わせて解析した結果として、KamLAND-Zen400 実験の結果 [13] は図 3.8 のように得られた。また、 ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ の半減期、ニュートリノ有効質量 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ に対して式 (3.5) の制限を与えた。

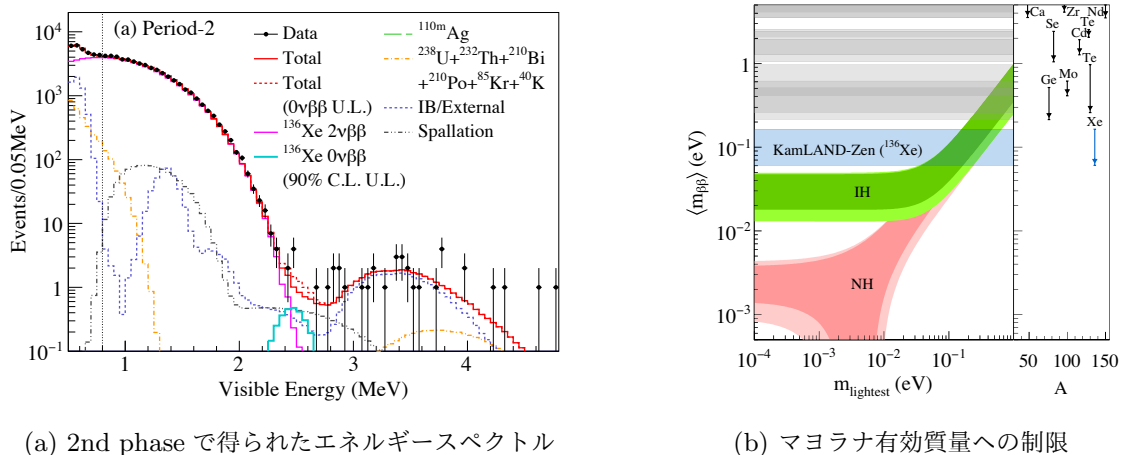


図 3.8: KamLAND-Zen400 実験の結果 [13]

$$T_{1/2}^{0\nu} > 1.07 \times 10^{26} \text{ year} \quad (90\% \text{C.L.}) \tag{3.4}$$

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle < 61 - 165 \text{ meV} \tag{3.5}$$

KamLAND-Zen 800 実験

実験感度の向上のために、 ^{136}Xe の溶解量を 800 kg に増やして行う実験を KamLAND-Zen 800 実験と呼ぶ。2015 年春から、Xe-LS を封入するミニバルーンが製作が始まった。ミニバルーンが完成し、2016 年に新たなミニバルーンが KamLAND 検出器に導入されたが、液体シンチレータのリークが疑われたため、 ^{136}Xe を溶解する前にミニバルーンを検出器から取り出した。ミニバルーンには実際にホールの存在が確認された。強度に関わるパラメータについて再考し、2018 年 5 月に直径 3.8 m の新たなミニバルーンが導入された。 ^{136}Xe の溶解と液体シンチレータの純化を行い、最終的に 745 kg の ^{136}Xe が液体シンチレータに溶解した。2019 年 1 月からデータ取得が開始し、約 4 ヶ月の実験期間で得られたエネルギースペクトルを図 3.9 に示す [14]。

3.3 将来実験 KamLAND2-Zen 実験

$0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の探索やニュートリノ質量階層構造の決定には、現状の KamLAND-Zen 実験よりもさらなる感度向上が求められる。感度向上には $2\nu\beta\beta$ バックグラウンドの低減が必要になるため、検出器のエネルギー分解能の向上が不可欠である。そこで将来実験 KamLAND2-Zen では、エネルギー分解能の向上、バックグラウンドの低減のために検出器を改良することが計画されている。以下に KamLAND2-Zen 実験における改良点を以下に記す。

^{136}Xe の溶解量

^{136}Xe の溶解量を約 1000 kg に増量し、検出感度を高める。Xe-LS の量が増えるため、ミニバルーン直径を約 4 m に大きくすることが予定されている。

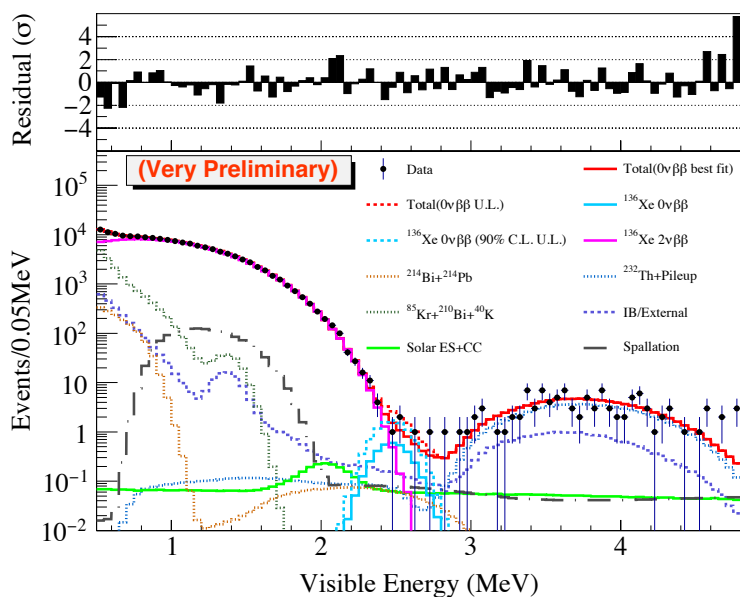


図 3.9: KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル [14]

大光量液体シンチレータ

同じエネルギー事象に対して発光量を増やすために、現在使用している KamLAND-LS に変えて新たな大光量液体シンチレータを使用することが計画されている。先行研究 [15] から、溶媒としてリニアアルキルベンゼン (LAB) が候補に挙がっており、1.4 倍程度の集光量改善が見込まれている。新液体シンチレータ (LAB-LS) の組成を表 3.4 に記す。

表 3.4: LAB-LS の組成

成分	組成式	密度 [g/cm ³]	組成割合
リニアアルキルベンゼン (LAB)	C _n H _{2n-6}	0.86	-
2,2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	C ₁₅ H ₁₁ NO	-	2.00 g/L
LAB-LS	-	0.86	-

高量子効率 PMT(HQE-PMT)

PMT の光電面に入射した光子の、光電子への変換効率を量子効率と呼ぶ。量子効率が高い PMT であれば、同じ入射光量に対して信号の大きさや検出率が高くなる。KamLAND-Zen 実験で使用している PMT の量子効率は約 20% である。計画されている高量子効率 PMT は量子効率が約 30% であり、1.9 倍ほどの集光量が見込まれる [16]。

集光ミラー

KamLAND-Zen 実験における PMT の被覆率は約 34% である。PMT にパラボリアンテナ型のミラーを取り付けることで、被覆率を改善することを期待している。集光ミラーを取り付けることで 1.8 倍の集光量が見込まれる [17]。

発光性バルーン

先述したように ^{214}Po の崩壊による α 線が、ミニバルーンによってエネルギーを失い、遅延同時計測ができず ^{214}Bi 事象の識別効率が下がることが問題となっている。そのため、ミニバルーン自体がシンチレーション光を発する素材を使用することで、 ^{214}Po の崩壊による α 線を検出し ^{214}Bi の識別効率を上げることが計画されている。先行研究 [18] より、発光性バルーン素材の候補として、ポリエチレンナフタレート (PEN) フィルムが挙げられている。PEN フィルムについての詳細は後述する。発光性バルーンを導入することで、 ^{214}Bi バックグラウンドを 99.7% 除去できると見込まれる。

これらの改良を加えた KamLAND2-Zen 実験の概要図を図 3.10 に示す。

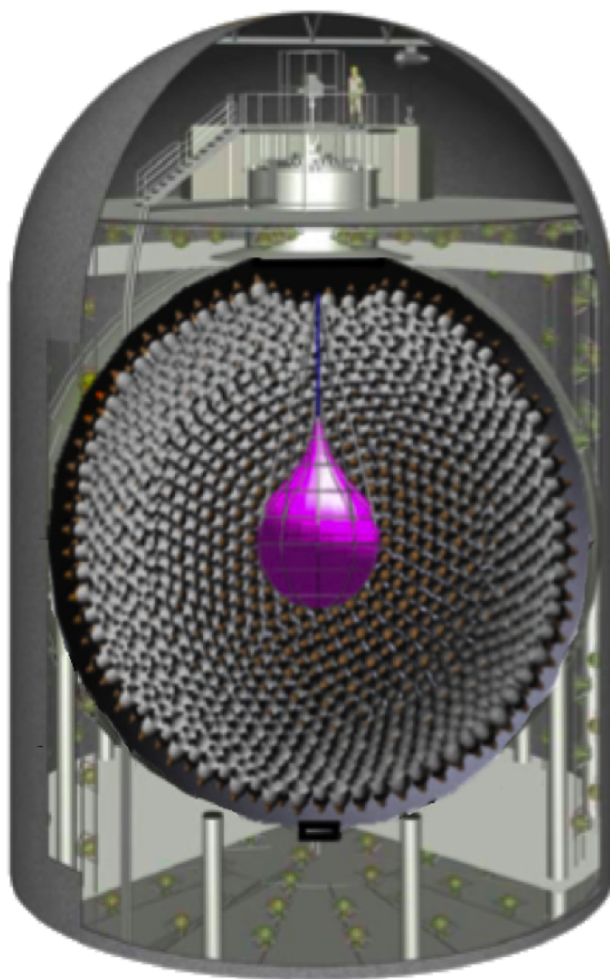


図 3.10: KamLAND2-Zen 実験の概要図

第 4 章

発光性バルーン

将来実験 KamLAND2-Zen 実験では、ミニバルーンの代わりに発光性バルーンを使用する計画がある。発光性バルーンを使用することで、前述したバルーン付近で生じる ^{214}Po の α 崩壊による α 線を検出できるようになり、 $0\nu\beta\beta$ 領域のバックグラウンドである ^{214}Bi を減らす。先行研究 [18] より、発光性バルーンフィルムの素材はポリエチレンナフタレート (PEN) が候補である。この章では、先行研究で確認された PEN フィルムの性能、ならびに確認されていなかった新液体シンチレータに対する耐性について述べる。

4.1 発光性バルーンフィルムへの要求項目

要求項目として、シンチレータとしての要求、KamLAND-Zen 実験で使われていたようなミニバルーンとしての要求の 2 種類がある。

4.1.1 シンチレータとしての要求項目

発光量

発光性バルーンの目的は、 ^{214}Po の α 崩壊で生じる 7687 keV の α 線を検出することである。このため、発光性バルーンの発光量が KamLAND 検出器の PMT に検出される程度であることが必要である。KamLAND の光量の閾値は約 300 keV であるため、発光性バルーンの見た目の光量が 300 keV 以上であることが要求される。

発光波長

発光性バルーンによる発光が液体シンチレータ中で吸収、減衰されないことが必要である。このため液体シンチレータの発光波長と同程度、または透過率の良い波長領域、PMT の量子効率が良い波長領域に合った発光性バルーンの発光波長が要求される。図 4.1 に、KamLAND-Zen 実験で使用している KamLAND-LS の発光スペクトルと 9 cm 透過率、17-inchPMT の量子効率を示す。

発光波形

発光性バルーンの発光波形と液体シンチレータの発光波形が異なる場合、発光が検出された際に波形弁別法を用いることで、発光がどちらで起きたかを識別できるようになる。

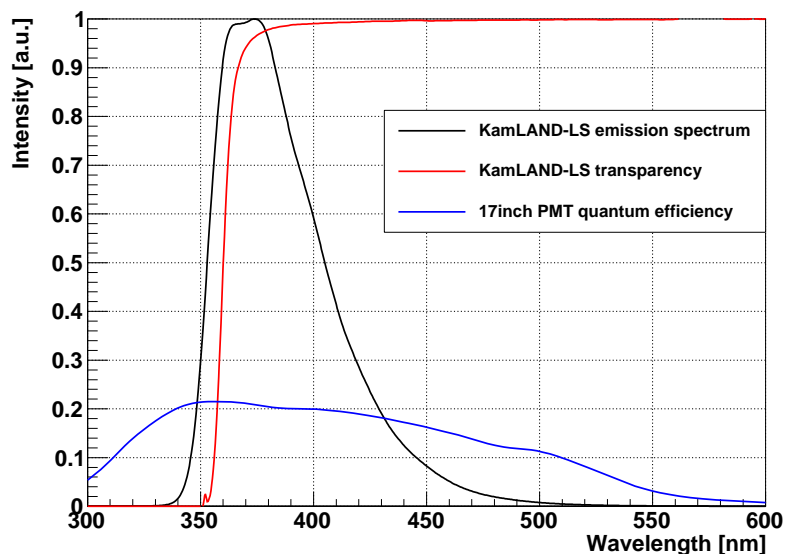


図 4.1: KamLAND-LS の発光スペクトルと 9 cm 透過率、17-inchPMT の量子効率の波長依存性。黒線が KamLAND-LS の発光スペクトル、赤線が KamLAND-LS の 9 cm 透過率、青線が 17-inchPMT の量子効率を示している。発光スペクトルは最大値、9 cm 透過率と量子効率は 100% で規格化している。

4.1.2 ミニバルーンとしての要求項目

透過率

ミニバルーン内には ^{136}Xe 含有液体シンチレータが封入される。このためミニバルーン内部で生じた発光が、発光性バルーン中で吸収、減衰されないことが重要である。液体シンチレータの発光波長並びに透過率の高い波長領域、PMT の量子効率が良い波長領域 (図 4.1 より 370~420 nm) における、発光性バルーンの透過率が高いことが要求される。

液体シンチレータ耐性

KamLAND-LS や Xe-LS の溶媒として使われている、1,2,4-トリメチルベンゼン (PC) は強い腐食性を持っている。ミニバルーンはこれらの液体シンチレータに浸かっているため、液体シンチレータに腐食されてミニバルーン素材が溶け出すことを防がなければいけない。しかし、通常のプラスチックシンチレータの場合には、液体シンチレータ耐性がないため原型をとどめないほど溶け出してしまふ。このため、発光性バルーン素材には液体シンチレータ耐性が要求される。

溶着方法

現在 KamLAND-Zen 実験で使われているナイロン製ミニバルーンは、計 24 枚のフィルムを熱溶着することでバルーン状に成形している。このため、PEN フィルムを使う場合には融点や化学組成

を考慮した、溶着方法を考える必要がある。

引張破断強度

ミニバルーンを製作した際に、バルーンが破壊されないような引張破断強度が必要になる。KamLAND-LS と Xe-LS の密度差から生じるミニバルーンフィルムに対して垂直にかかる力と、垂直にかかる力によって生じるフィルムに対して平行な力と、2つの力を考慮しなければならない。予測される力を計算する際には、ミニバルーンが完全な球状として考えているが、実際のミニバルーンは零状であり溶着部分などでは歪みが生じることが予想される。このため、安全ファクターとして計算値の 10 倍を与え、これを満たす強度が必要である。

放射線不純物含有量

自然に存在する放射性核種のうち、 ^{238}U 崩壊系列と ^{232}Th 崩壊系列、 ^{40}K が $0\nu\beta\beta$ 領域のバックグラウンドとなる。このためミニバルーン素材にも、これらの核種の混入量を出来るだけ少なくする必要がある。放射性不純物含有量の要求値は、KamLAND-Zen 実験で使用しているミニバルーン作成時の要求値を使用した。この要求値を表 4.1 に記す。要求値を満たせば、解析によってバックグラウンドを除去することができ、無視できるほどバックグラウンドを低減する。

表 4.1: ミニバルーン素材への放射性不純物含有量の要求値 [19]

放射性不純物	要求値
^{238}U	$< 3.0 \times 10^{-12} \text{ g/g}$
^{232}Th	$< 3.0 \times 10^{-12} \text{ g/g}$
^{40}K	$< 2.4 \times 10^{-11} \text{ g/g}$

4.2 先行研究による PEN の評価

先行研究 [18] より、PEN フィルムの要求項目に対する実験結果を表 4.2 に示す。

表 4.2: PEN フィルムの実験結果

評価項目	結果	コメント
α 線発光の確認	○	-
発光量測定	○	^{214}Po の 7687 keV の α 線に対して見かけ上の光量：約 440 keV
発光波長測定	○	430 nm
発光波形	○	$\tau_{\text{fast}} = 27.44 \text{ nsec}$ 、 $\tau_{\text{slow}} = 199.2 \text{ nsec}$
LS 耐性	○	PC に対する溶け出しは確認されなかった
透過率	△	LS 発光波長である 380 nm では悪い、400 nm より高波長側は良い
溶着	○	熱溶着でリークなし、強度も要求値を満たす
放射性不純物	△	^{238}U が要求値よりも多い

PEN フィルムは放射性不純物の中でも、 ^{238}U の含有量が要求値を上回ってしまった。しかし、 ^{238}U 崩壊系列における $0\nu\beta\beta$ 領域のバックグラウンドは ^{214}Bi である。発光性バルーンは ^{238}U 崩壊系列の ^{214}Bi のバックグラウンドを低減することができるため、PEN フィルムを発光性バルーンの素材として使うことは可能である。また、液体シンチレータの発光波長付近での PEN フィルムの透過率が悪かった。このため、ミニバルーン内部の Xe-LS で発光が生じた場合、ミニバルーンによって吸収、減衰されるため、見かけ上のエネルギーが下がってしまい検出できない恐れがある。

4.3 波長変換剤

前述の PEN フィルムを用いて発光性バルーンを作成する際に、KamLAND-LS と LAB-LS は発光波長が 380 nm 付近であるため、発光性バルーンに吸収、減衰される。そこで、PEN フィルムの透過率が 400 nm 以上で良いこと、PMT の量子効率が 450 nm 以上で小さくなることから、液体シンチレータの発光波長を 400~450 nm に変えることが必要である。先行研究 [18] より、1,4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン (Bis-MSB) が波長変換剤の候補として挙げられている。Bis-MSB の吸収波長は 380 nm、発光波長は 420 nm である。KamLAND-Zen 実験で発光剤として使用している PPO と、波長変換剤の Bis-MSB の吸収・発光スペクトルを図 4.2 に示す。

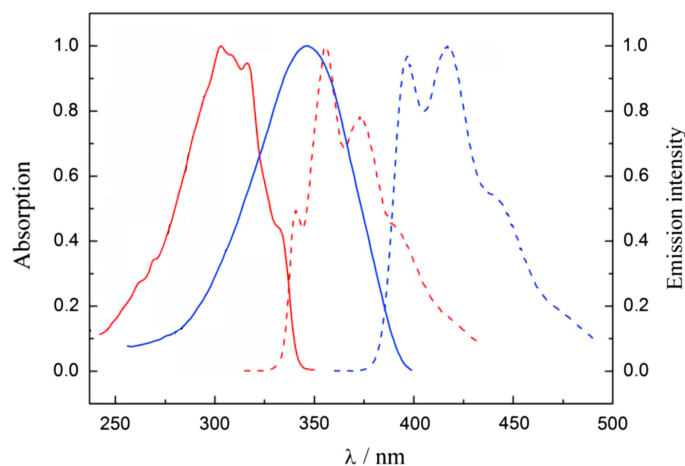


図 4.2: PPO と Bis-MSB の吸収・発光スペクトル [20]。実線が吸収スペクトル、点線が発光スペクトルを示している。また、赤線が PPO のスペクトル、青線が Bis-MSB のスペクトルを示している。

4.3.1 発光波長測定

Bis-MSB を添加することで、液体シンチレータの発光波長が変化することを確認するために、発光波長の測定を行う。

実験原理

発光波長測定には、分光蛍光光度計 F-2700(日立ハイテクサイエンス製) を用いた。分光蛍光光度計とは、試料の励起スペクトルと蛍光スペクトルを測定する装置である。分光蛍光光度計の概念図を図 4.3 に示す。

励起光源にはキセノンランプを使用しており、光源から発せられた白色光は励起側分光器に入射される。励起光強度はミラーによって分割された光をモニター用検知器で測定している。励起光が試料に入射されると、試料が励起されて蛍光を発する。蛍光は蛍光側分光器へと入射され、最終的に蛍光検出器によって蛍光強度が測定される。蛍光スペクトルを測定する場合、励起側分光器を特定の波長に固定し、蛍光側分光器の波長を変化させることで各波長の蛍光強度をスキャンする。一方で励起スペクトルを測定する場合、蛍光側分光器を特定の波長で固定し、励起側分光器の波長を変化させることで各波長をスキャンしていき蛍光強度の変化を測定する。

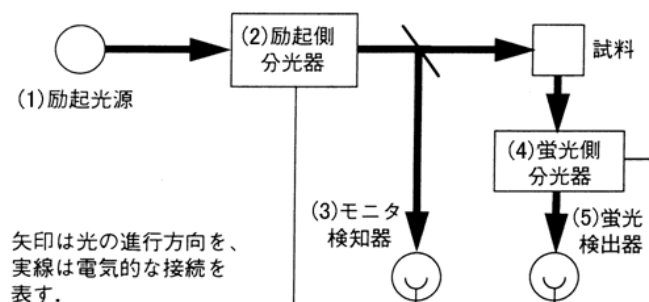
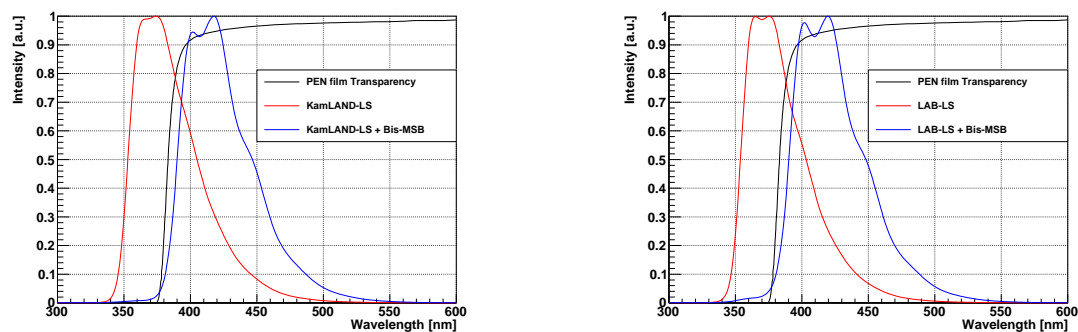


図 4.3: 分光蛍光光度計の概念図

実験結果

図 4.4 に各液体シンチレータの Bis-MSB の添加有無の発光波長を示す。



(a) KamLAND-LS の発光波長

(b) LAB-LS の発光波長

図 4.4: 各液体シンチレータの発光波長と PEN フィルムの透過率 [18]。各発光スペクトルは最大値で、透過率は 100% で規格化している。Bis-MSB は 15 mg/L だけ溶解している。各測定における励起波長は、290 nm である。

これより、Bis-MSB によって発光波長が 420 nm 付近に変化することが確認できた。また、発光波長を変換させたことによって、PEN フィルムの透過率が良い領域で発光することが確認できた。このため、発光性バルーンを PEN フィルムで作製する際には、液体シンチレータに溶解させる波長変換剤として、Bis-MSB が適している。

4.4 LAB-LS 耐性

先行研究 [18] では、PEN フィルムの KamLAND-LS 耐性があることを確認した。しかし、将来実験では LAB が液体シンチレータの溶媒となるため、PEN フィルムが LAB-LS 耐性を持つかの評価が必要である。

4.4.1 測定方法

PEN フィルムの LAB-LS 耐性を評価するために、加速劣化試験を行なった。アレニウスの法則から、温度が 10°C 上がるごとに化学反応速度が 2 倍になる。KamLAND 検出器における液体シンチレータの温度は 15°C であるため、 45°C の恒温槽に入れることで化学反応速度が 8 倍になる。本研究では、恒温槽に 45 日と 90 日保管したサンプルを使用したため、実質 1 年間と 2 年間経過した場合の反応を評価することになる。

各サンプルは、PEN フィルム (2500 cm^2) を液体シンチレータ (1 L) に浸した状態で恒温槽に保管した。液体シンチレータの体積と PEN フィルムの面積の S/V 比は 250 /m となる。一方で、現在の KamLAND-Zen 実験においては、Xe-LS の体積が 30.5 m^3 、ミニバルーンフィルムの表面積が 45 m^2 であるため、S/V 比は 1.49 /m となる。これより、本研究では PEN フィルムが液体シンチレータに溶け出す効果が、KamLAND-Zen 実験に比べて十分多く見える。

PEN フィルムが液体シンチレータに溶け出した場合、液体シンチレータの透過率が下がる。このため、加速劣化試験後の PEN フィルム有無のサンプルの透過率を比較することで液体シンチレータ耐性を確認する。本研究では、ダブルビーム型分光光度計 U-3900(日立ハイテック製) を用いて透過率を測定する。透過率測定の詳細については後述する。今回測定したサンプルを表 4.3 に記す。

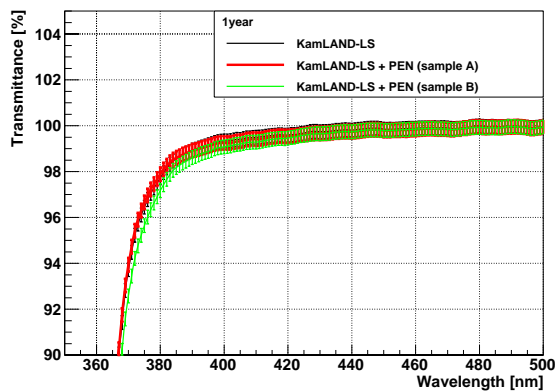
表 4.3: 加速劣化試験のサンプル

番号	PC ベース	LAB ベース
1	KamLAND-LS	LAB-LS
2	KamLAND-LS + PEN サンプル A	LAB-LS + PEN サンプル A
3	KamLAND-LS + PEN サンプル B	LAB-LS + PEN サンプル B
4	KamLAND-LS + Bis-MSB	LAB-LS + Bis-MSB
5	KamLAND-LS + Bis-MSB + PEN サンプル A	LAB-LS + Bis-MSB + PEN サンプル A
6	KamLAND-LS + Bis-MSB + PEN サンプル B	LAB-LS + Bis-MSB + PEN サンプル B

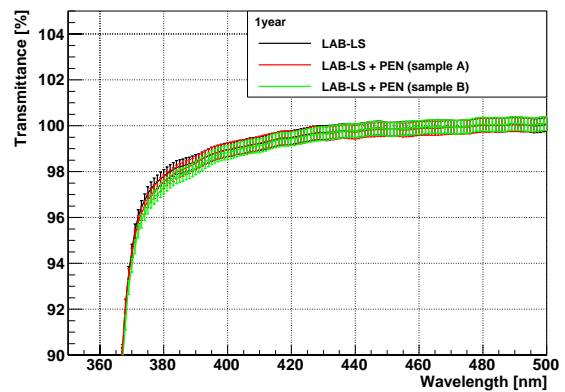
サンプル 1 を基準として 2、3 の透過率を、サンプル 4 を基準として 5、6 の透過率を比較することで PEN フィルムからの溶け出しを確認する。

4.4.2 測定結果

実質 1 年間経過したサンプルについて 9 cm 透過率の結果を、図 4.5 にサンプル 1 ~ 3、図 4.6 にサンプル 4 ~ 6 に、実質 2 年間経過したサンプルについて 9 cm 透過率の結果を、図 4.7 にサンプル

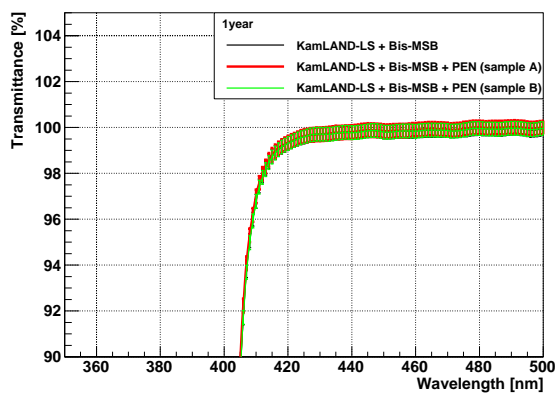


(a) KamLAND-LS サンプル

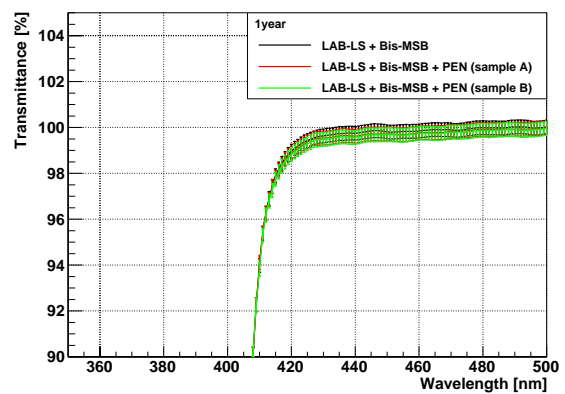


(b) LAB-LS サンプル

図 4.5: 実質 1 年間経過した Bis-MSB なしサンプルの 9 cm 透過率



(a) KamLAND-LS+Bis-MSB サンプル

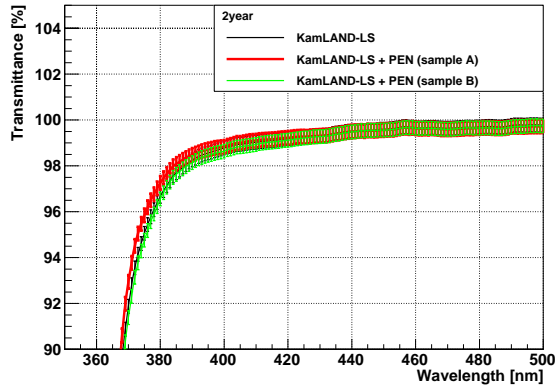


(b) LAB-LS+Bis-MSB サンプル

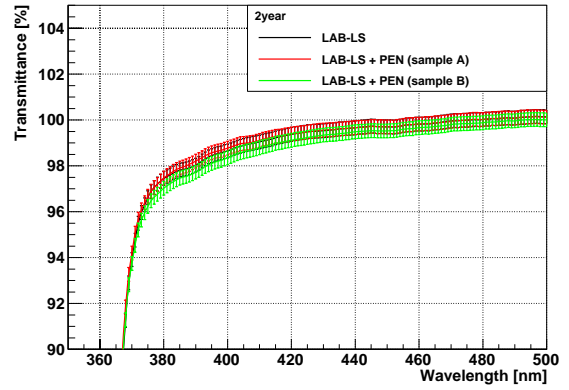
図 4.6: 実質 1 年間経過した Bis-MSB ありサンプルの 9 cm 透過率

1 ~ 3、図 4.8 にサンプル 4 ~ 6 に示す。

透過率測定より、後述する測定誤差 ($\pm 0.3\%$) の範囲内で一致している。これより、PEN フィルムの溶け出しは確認できなかったため、PEN フィルムは KamLAND-LS 耐性、LAB-LS 耐性を持つと考えられる。また、これらの液体シンチレータの透過率を用いて、KamLAND 検出器における収光量を比較した。9 cm 透過率を 6.5 m 透過率に変換する際に不定性が大きくなってしまいが、PEN ありの各サンプルの収光量は PEN なしのサンプルと比較して、10% 以内の低下に抑えられていることを確認した。

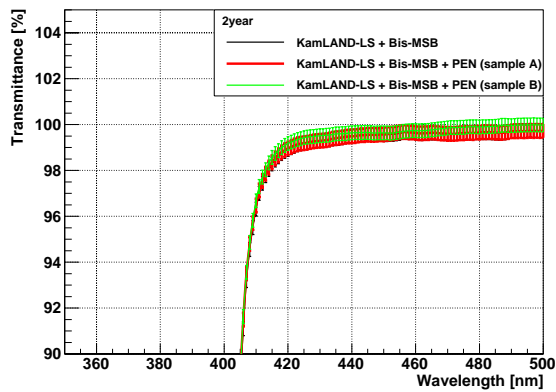


(a) KamLAND-LS サンプル

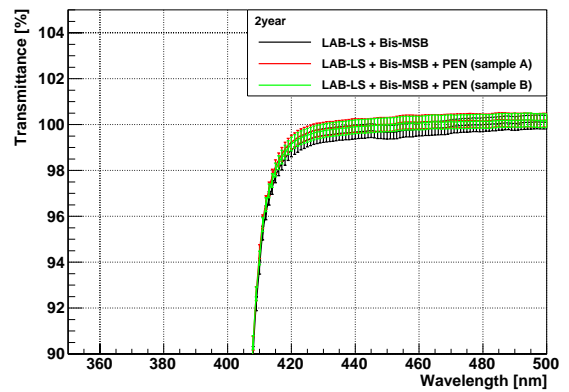


(b) LAB-LS サンプル

図 4.7: 実質 2 年間経過した Bis-MSB なしサンプルの 9 cm 透過率



(a) KamLAND-LS+Bis-MSB サンプル



(b) LAB-LS+Bis-MSB サンプル

図 4.8: 実質 2 年間経過した Bis-MSB ありサンプルの 9 cm 透過率

第 5 章

波長変換剤含有液体シンチレータの評価

本章では、発光性バルーンを使用する場合に用いる、波長変換剤 Bis-MSB を溶かした液体シンチレータの性能評価について述べる。Bis-MSB を添加した KamLAND-LS に関する研究は過去に行われている [21]。また、次世代型ニュートリノ検出器として開発、建設されている「JUNO(Jiangmen Underground Neutrino Observatory)」では、液体シンチレータとして Bis-MSB を添加した LAB を使用する予定である [22]。これらの研究から、本研究では液体シンチレータに添加する Bis-MSB の量を 15 mg/L とした。

5.1 液体シンチレータの光学的性質

液体シンチレータの光学的性質として、発光量、透過率、光の散乱、光の吸収・再発光などが挙げられる。LAB-LS の光学的性質について、先行研究より発光量や透過率が測定されている。KamLAND 検出器の場合には液体シンチレータの周りを PMT が覆っているため、光の散乱や吸収・再発光も観測することができる。しかし、実験室で行う発光量測定や透過率測定は、バイアルやセルに入れた液体シンチレータの発光を PMT で観測するため、光の散乱や吸収・再発光の効果を考慮していない。このため、実際の光量よりも小さい結果を得ていると考えられる。

観測の精度を向上させるためには、実験をシミュレーションで再現することが必要である。KamLAND2-Zen 実験をフルシミュレーションで再現するためには、液体シンチレータの光学的性質をパラメーターとして導入することで、液体シンチレータ中の光の伝播を正確に再現する必要がある。以下に液体シンチレータの光学的性質の評価について記していく。

5.2 発光量測定

5.2.1 測定原理

発光量測定には、 ^{137}Cs 線源が崩壊するときに放出する 662 keV の γ 線を使用する。 γ 線と物質の相互作用として、光電効果、コンプトン散乱、電子陽電子対生成の 3 種類が挙げられる。発生する相互作用は、物質の種類と γ 線のエネルギーによって決まる。光電効果は γ 線の持つエネルギーが比較的 low、物質の原子番号が大きい時に起こりやすい。一方で電子陽電子対生成は、電子 2 個分の静止質量 (1.022 MeV) を超えるエネルギーを持つ γ 線が必要になる。液体シンチレータの主要な構成元素は炭素と水素であるため、 ^{137}Cs 線源が崩壊するときに放出する 662 keV の γ 線との相互作用は、

コンプトン散乱が支配的である。

コンプトン散乱は、 γ 線が物質中の電子と散乱する際に一部のエネルギーを電子に与え、様々な角度に散乱することである。 γ 線のエネルギーを E_γ 、電子の静止質量を m_e とおくと反跳電子のエネルギー E_e は式 (5.1) のように表す。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2}(1 - \cos \theta)} \quad (5.1)$$

$$= E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{2E_\gamma}{m_e c^2}} \quad (5.2)$$

後方散乱 ($\theta = 180^\circ$) のとき、式 (5.2) より反跳電子の最大エネルギーは 477 keV となり、後方散乱した γ 線のエネルギーは 185 keV となる。本研究では、477 keV の反跳電子による液体シンチレータの発光と、185 keV の後方散乱された γ 線による NaI シンチレータの発光を、遅延同時計測することで後方散乱イベントを測定した。図 5.1 に発光量測定概念図を示す。

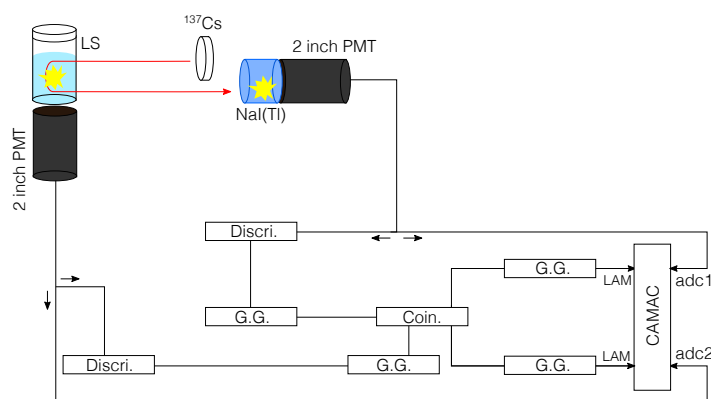


図 5.1: 発光量測定概念図

5.2.2 測定方法

発光量測定をする際に、液体シンチレータ中に溶けている酸素による消光効果を考慮しなければならない。酸素による消光効果を防ぐために、窒素などの安定な気体に置換し溶存酸素を脱気する必要がある。先行研究 [23] より、バイアル中の液体シンチレータ 100 mL に対して流量 550 mL/min で 3 分間窒素置換を行うことで、発光量が飽和することが確認されている。以下に測定の順序を記す。

1. 液体シンチレータの各サンプルを 100 mL 作成する。
2. 酸素濃度 1% 以下のグローブボックス内で、流量 550 mL/min で 3 分間窒素置換を行う。
3. バイアル外部を洗浄し、測定装置に設置する。
4. LS 側 PMT には 1800 V、NaI 側 PMT には 750 V の電圧を印加し、2 時間測定する。

5.2.3 測定結果

液体シンチレータの発光量測定の電荷分布図を図 5.2 に示す。PMT からの出力電荷量を ADC(Analog to Digital Converter) によって、デジタル・チャンネル数 (ADC 値) に変換している。(a) におけるガウス関数でフィットしたスペクトル (赤線) は、185 keV の後方散乱された γ 線イベントを示している。(b) において、LS で観測された全イベントのスペクトル (黒線) と、後方散乱された γ 線によってセクションした 447 keV の反跳電子イベントのスペクトル (赤線) を示している。(b) における赤線をガウス関数でフィットして得られた中央値 (Mean) を、LS の発光量とする。各液体シンチレータの中央値を比較することで、発光量を評価した。先行研究 [24] より発光量測定の系統誤差は 1.6% と見積もられている。表 5.1 に、各液体シンチレータの発光量測定の結果を記す。

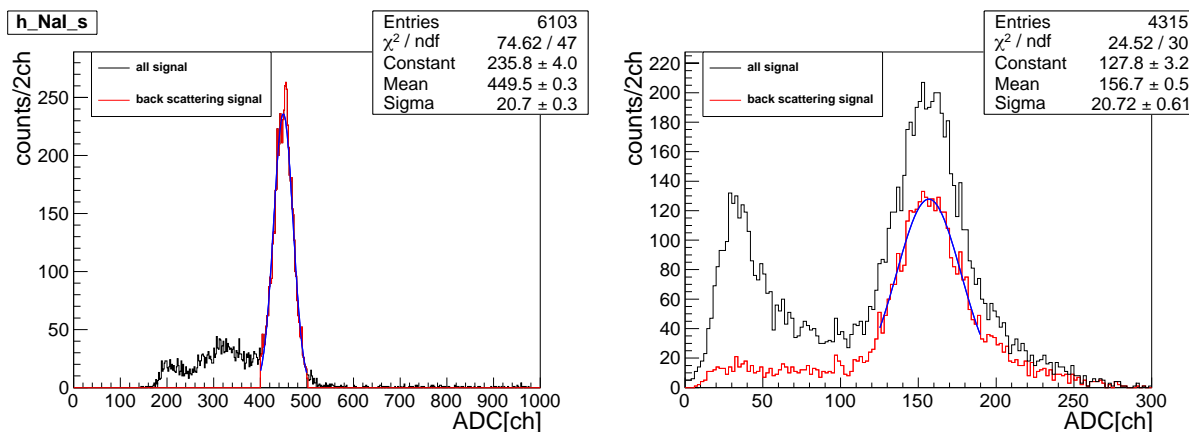


図 5.2: 液体シンチレータの発光量測定で得られた電荷分布図。(b) の赤線のヒストグラムは (a) で後方散乱された γ 線によってセクションした、447 keV の反跳電子による発光イベント。

表 5.1: 各液体シンチレータの発光量測定の結果

液体シンチレータ	ADC 値	相対発光量
KamLAND-LS	142.3 ± 2.3	1.000
LAB-LS	142.6 ± 2.3	1.002 ± 0.023
KamLAND-LS + Bis-MSB	159.9 ± 2.6	1.124 ± 0.025
LAB-LS + Bis-MSB	160.2 ± 2.6	1.126 ± 0.025

これらの結果より、Bis-MSB を添加した液体シンチレータの方が発光量が 12% ほど増加していることを確認した。また、波長変換剤を添加することによって光量に悪い影響がないことを確認した。

5.3 9 cm 透過率測定

5.3.1 測定原理

透過率測定にはダブルビーム型分光光度計 U-3900(日立ハイテク製)を用いた。分光光度計とは、紫外から可視光領域の入射光に対して、吸光光度を測定する装置である。分光光度計の概念図を図 5.3、透過率測定概念図を図 5.4 に示す。

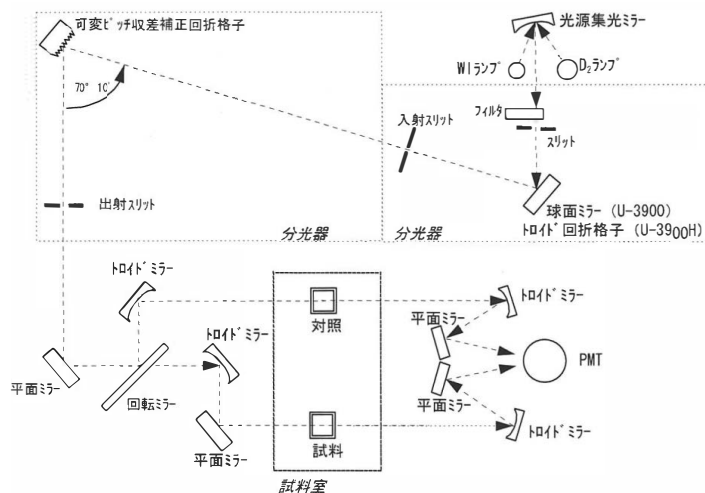


図 5.3: 分光光度計の概念図

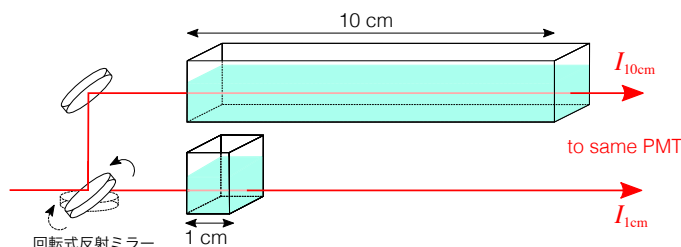


図 5.4: 透過率測定概念図

光源には 2 つのランプを使用しており、可視領域ではハロゲンランプ、紫外領域では重水素ランプを使用している。回折格子を用いたモノクロメーターによって、単色光として取り出す。取り出した単色光を回転ミラーが切り替わることで、サンプルの入っている 1 cm 石英セルと 10 cm 石英セルに入射する。サンプルを透過した光が PMT で検出されることで光強度を測定する。石英セルを使うことで、セル表面での吸収の影響による光量損出を無視することができる。

リファレンス用の 1 cm とサンプル用の 10 cm の透過光強度をそれぞれ I_{1cm} 、 I_{10cm} とおくと、光路差 9 cm を透過する間に減衰した光量の相対値は、式 (5.3) に示す。

$$T_{9cm,Relative} = \frac{I_{10cm}}{I_{1cm}} \tag{5.3}$$

短距離の透過率がほぼ 100% であり、サンプルと屈折率が近い物質ならばサンプルと同じ条件で測定することができるため、基準値を測定することができる。基準値を用いることで、サンプルの絶対的な光透過率を得ることができる。本研究では、サンプルの液体シンチレータと屈折率が比較的近い物質 ($n=1.42$) である、シクロヘキサンを用いて基準値を測定している。9 cm 透過率 $T_{9\text{cm}}$ は式 (5.4) のように求まる。

$$\begin{aligned} T_{9\text{cm}} &= \frac{T_{9\text{cm,relative}}(\text{sample})}{T_{9\text{cm,relative}}(\text{baseline})} \\ &= \frac{I_{10\text{cm}}(\text{sample})/I_{1\text{cm}}(\text{sample})}{I_{10\text{cm}}(\text{baseline})/I_{1\text{cm}}(\text{baseline})} \end{aligned} \quad (5.4)$$

5.3.2 測定方法

1. 分光光度計と PC の電源を入れ、測定プログラムを起動する。
2. 光源の安定性のため、30 分間待つ。
3. アセトンを用いてセルを洗浄後、1 cm セルと 10 cm セルにシクロヘキサンを入れて、基準値を測定する。
4. セル洗浄後に、サンプルを両セルに入れる。サンプルの安定化のために、5 分以上置いてから測定する。
5. 1 サンプルにつき 3 回測定する。測定のたびにセルの洗浄、サンプルの入れ替えを行う。
6. 3 回の測定の平均値を、透過率測定の結果とした。

先行研究 [25] より、1 回の測定につき 0.6% の測定誤差が生じるため、3 回の測定を行うことで 0.3% の測定誤差が生じることが見込まれる。また、サンプルをセルに入れる際に、サンプル中に気泡が生じる場合がある。気泡がサンプル中に存在していると入射光が屈折や吸収されることがあるため、正確な透過率を測定することができない。このため、セルにサンプルを入れた後、5 分以上放置してから測定を行う。

5.3.3 測定結果

各液体シンチレータの 9 cm 透過率の結果を図 5.5 に示す。

これらの結果より、Bis-MSB を添加した液体シンチレータについては、Bis-MSB の吸収波長 (~400 nm) 以上の領域でほぼ 100% であり、Bis-MSB が 9 cm 透過率に悪影響を与えないことを確認できた。

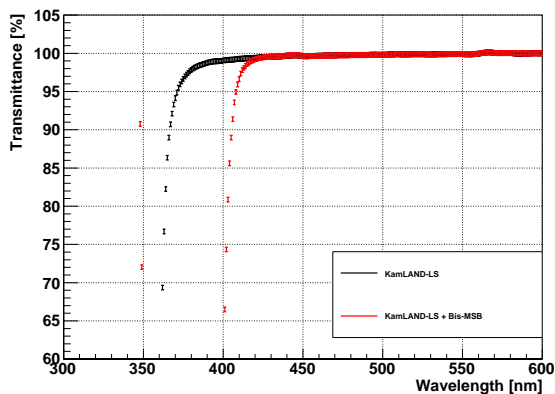
半径 6.5 m の KamLAND 検出器内部を LS が満たすため、透過率の評価には 6.5 m 透過率が必要になる。測定した 9 cm 透過率を $t_{9\text{cm}}$ 、6.5 m 透過率を $T_{6.5\text{m}}$ を以下の式で書き表す。

$$t_{9\text{cm}} = t_0 \pm \delta t, \quad T_{6.5\text{m}} = T_0 \pm \delta T$$

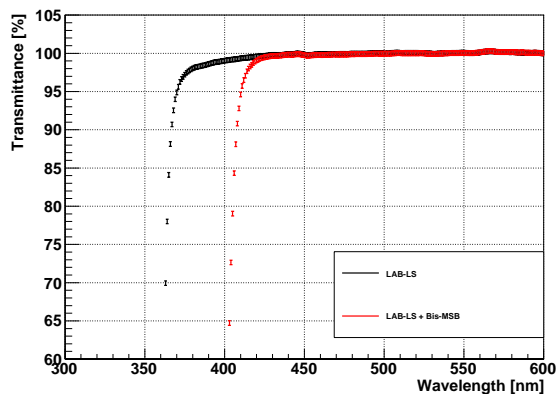
このとき、測定した $t_{9\text{cm}}$ を $T_{6.5\text{m}}$ へと変換する式を、式 (5.5) に示す。

$$T_0 = t_0^{\frac{650}{9}}, \quad \delta T = \frac{650}{9} \times \frac{|T_0|}{|t_0|} \times \delta t \quad (5.5)$$

図 5.6 に式 (5.5) で変換した LAB-LS+Bis-MSB の 6.5 m 透過率を示す。

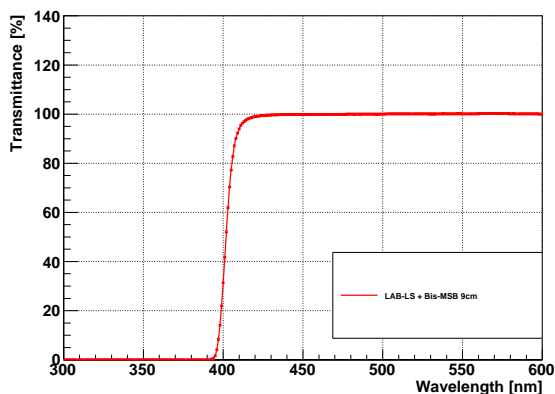


(a) KamLAND-LS の 9 cm 透過率

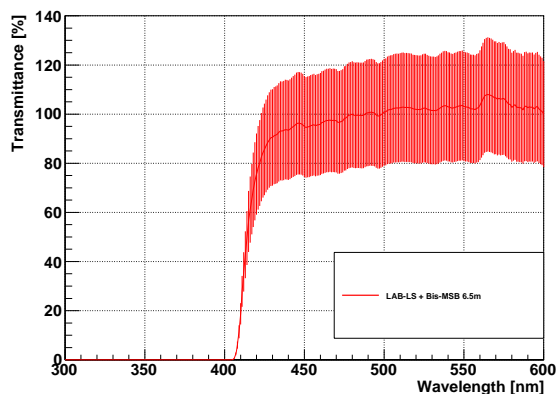


(b) LAB-LS の 9 cm 透過率

図 5.5: 各液体シンチレータの 9 cm 透過率



(a) 測定した LAB-LS+Bis-MSB の 9 cm 透過率



(b) 変換した LAB-LS+Bis-MSB の 6.5 m 透過率

図 5.6: LAB-LS+Bis-MSB の 6.5 m 透過率

変換した 6.5 m 透過率には、最大で 20% ほどの大きな誤差が生じてしまう。収光量の評価には 6.5 m 透過率が必要だが、このように大きな誤差がついていると正確な評価を行うことができない。この大きな誤差を減らすためには、 $O(1\text{ m})$ 規模での透過率測定が必要になる。

5.4 屈折率測定

5.4.1 測定原理

屈折率測定にはアッペ屈折計 NAR-1T LIQUID(アタゴ製)を用いた。アッペ屈折計は臨界角法を用いて、サンプルの屈折率を測定する。臨界角法の概要図を図 5.7 に示す。屈折率 N のプリズムの上に、屈折率 n のサンプルを乗せる ($N > n$)。サンプル側から点 O に向けて様々な入射角の光を入射

させると、臨界角 β 以上には屈折することができない。観測者は明暗の境界を観測することで β を求める。 β を求めることができれば、式 (5.6) からサンプルの屈折率を計算することができる。

$$n = N \times \sin\beta \quad (5.6)$$

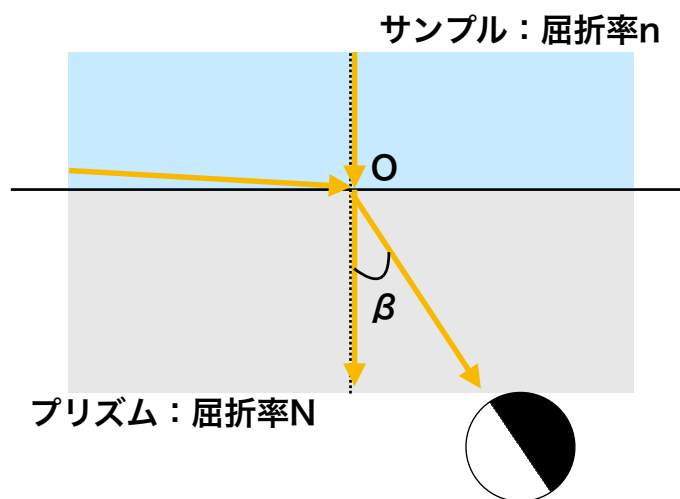


図 5.7: 臨界角法の概念図

5.4.2 測定方法

1. 恒温水槽の電源を入れ、測定温度まで冷やす。並びに分光蛍光光度計の電源を入れ、光ファイバーを固定する。
2. アッベ屈折計のプリズムをアセトンで拭き取った後に、プリズムが浸るようにサンプルを 2~3 滴垂らす。
3. 分光蛍光光度計での発光波長を変えながら測定する。
4. 1 サンプルにつき 3 回測定する。測定のたびにプリズムの拭き取り、サンプルの入れ替えを行う。
5. 3 回の測定の平均値を、屈折率測定の結果とした。

本研究では可視光でしか測定することができないため、測定波長は 420~600 nm である。また、後述する光の散乱測定時の温度が約 20°C、KamLAND 検出器内の液体シンチレータの温度が 13°C であることから、測定温度は 20°C と 13°C の 2 点である。先行研究 [17] より、測定誤差は 0.001 である。

5.4.3 測定結果

LAB-LS+Bis-MSB の屈折率測定の結果を図 5.8 に示す。コーシーの拡散方程式 [26] より式 (5.7) でフィットを行い、測定点以外の屈折率を補間する。フィット結果を表 5.2 に記す。

$$n(\lambda) = a + \frac{b}{\lambda^2} + \frac{c}{\lambda^4} \quad (5.7)$$

表 5.2: 屈折率のフィット結果

サンプル	温度 [°C]	a	b	c
LAB-LS + Bis-MSB	13	1.4682 ± 0.0022	6492 ± 1023	(-0.6977 ± 1.1907) × 10 ⁸
LAB-LS + Bis-MSB	20	1.4646 ± 0.0049	6823 ± 2433	(-0.9828 ± 2.9222) × 10 ⁸

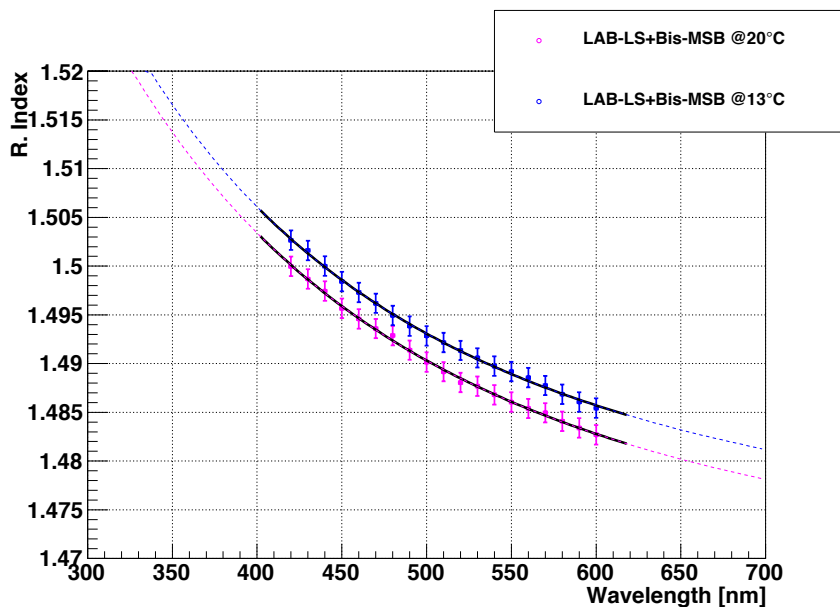


図 5.8: LAB-LS+Bis-MSB の屈折率測定。各点が測定結果を、点線がフィットして得られた関数を示している。また、ピンク色が温度 20°C、青色が温度 13°C を示している。

5.5 光の散乱測定

5.5.1 光の散乱

液体シンチレータ中の光の散乱の大部分は、入射光と散乱光の波長が同じ弾性散乱である。主な弾性散乱として、レイリー散乱とミー散乱をあげる。

レイリー散乱 (Rayleigh scattering)

入射光の波長 λ が、液体シンチレータの粒子半径 a に比べて十分大きいとき ($\lambda \gg a$)、入射光の電場が、粒子内部の電子を振動させ双極子が励起されることで散乱が生じる。これをレイリー散乱と呼ぶ。単一の双極子によるレイリー散乱の光強度比は式 (5.8) のように書ける。

$$\frac{i_s(\theta)}{I_0} = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^4 \frac{\alpha^2}{r^2} \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \tag{5.8}$$

ここでは散乱光強度を $i_s(\theta)$ 、入射光強度を I_0 、入射光の波長を λ 、散乱分子の分極率を α 、 r は散

乱点から測定点までの距離、散乱角を θ とおいた。単位体積あたり N 個の粒子が存在するとき、散乱光強度を $I_s(\theta)$ とおくと光強度比は式 (5.9) のようにかかる。

$$\frac{I_s(\theta)}{I_0} = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^4 \frac{N\alpha^2}{r^2} \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \tag{5.9}$$

散乱光強度は λ^4 に反比例し、散乱角 θ について図 5.9 のような角度分布を持つ。また、散乱光は偏光特性を持っており、図 5.9 の散乱面に対して直角方向の偏光成分 I_1 は等方的な広がりを示すが、平行方向の偏光成分 I_2 は角度分布を持つ。しかし、この関係は等方性な粒子に関してだけである。異方性の粒子に対しては、誘起される双極子が入射光の電場と同じ方向に振動するとは限らないため、図のような偏光特性は見られない。

式 (5.10) を全立体角で積分すると全光強度比が求まる。

$$\begin{aligned} \frac{I_{s,Total}}{I_0} &= \frac{8\pi^4 N\alpha^2}{\lambda^4} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \frac{(1 + \cos^2 \theta)}{r^2} r^2 \sin \theta d\theta d\phi \\ &= \frac{128\pi^5 N\alpha^2}{3\lambda^4} \end{aligned} \tag{5.10}$$

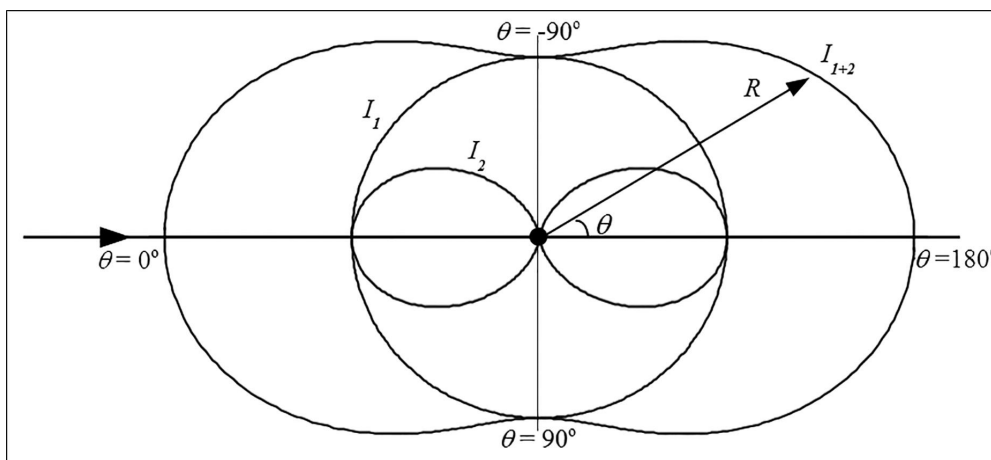


図 5.9: レイリー散乱の角度分布と偏光特性 [27]

以上は希薄ガス内におけるレイリー散乱である。

一方で、液体中におけるレイリー散乱は少し異なる [28, 29]。レイリー散乱は体積散乱関数 $\beta(\theta)$ で特徴付けられている。

$$\beta(\theta) = \frac{I(\theta)}{I_0} \frac{r^2}{V} = \frac{I(\theta)}{I_0} \frac{1}{\Delta\Omega\Delta l} \tag{5.11}$$

ここで、 $I(\theta)$ は散乱角 θ における散乱光強度、 I_0 は入射光強度、 r は散乱点から観測点までの距離、 V は散乱体積を示している。 V と r の関係は、立体角 $\Delta\Omega$ と散乱体積中の入射光軸の長さ Δl で表

すことができる。 $\beta(\theta)$ を用いて散乱長 l_S は以下のように求めることができる。

$$l_S = \left[\iint \beta(\theta) d\Omega \right]^{-1} \quad (5.12)$$

散乱光強度 $I(\theta)$ は、散乱光の散乱面に対する平行偏光の強度 $I_{\parallel}(\theta)$ と散乱面に対する垂直偏光の強度 $I_{\perp}(\theta)$ との、2 つに分けることができる。ここでは A と B は観測量である。

$$I(\theta) = I_{\perp}(\theta) + I_{\parallel}(\theta) \quad (5.13)$$

$$= \frac{1 + \cos^2\theta}{2} A + B \quad (5.14)$$

散乱光の各偏光における角度依存性は以下の形をとる。

$$I_{\parallel}(\theta) = \frac{\cos^2\theta}{2} A + \frac{B}{2} \quad (5.15)$$

$$I_{\perp}(\theta) = \frac{A}{2} + \frac{B}{2} \quad (5.16)$$

偏光解消度 δ は 90° における散乱光の偏光強度を用いて、以下のように定義する。

$$\delta = \frac{I_{\parallel}(90^\circ)}{I_{\perp}(90^\circ)} = \frac{B}{A+B} \quad (5.17)$$

同様に、 90° のときの体積散乱関数を、レイリー比 R と定義する。

$$R \equiv \beta(90^\circ) = \frac{I(90^\circ)}{I_0} \frac{1}{\Delta\Omega\Delta l} \quad (5.18)$$

式 (5.17)、(5.18) を用いると、体積散乱関数は以下のように式を変形できる。

$$\beta(\theta) = R \times \left(1 + \frac{1-\delta}{1+\delta} \cos^2\theta \right) \quad (5.19)$$

よって、式 (5.12) に代入すると散乱長が求められる。

$$\begin{aligned} l_S &= \left[\iint \left\{ R \times \left(1 + \frac{1-\delta}{1+\delta} \cos^2\theta \right) \right\} d\Omega \right]^{-1} \\ &= \left[\frac{8\pi}{3} R \frac{2+\delta}{1+\delta} \right]^{-1} \end{aligned} \quad (5.20)$$

等方的な液体だった場合は偏光解消度が 0 となり、散乱長はレイリー比のみで求められる。等方的な液体についての理論を、Einstein と Smolichowski が発展させた。液体が均一である場合、散乱は弱め合う干渉によって前方散乱以外は消えてしまう。しかし、液体は分子の熱運動によって、局所的な密度がランダムに変動しているため、散乱強度が増加する。Einstein-Smolichowski 定理より、等方的な液体のレイリー比 R_{iso} は以下のように書ける。

$$R_{\text{iso}} = \frac{\pi^2}{2\lambda^4} \left[\rho \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T \right]^2 kT\kappa_T \quad (5.21)$$

ここで、 λ は散乱光の波長、 ρ は液体の密度、 ε は液体の平均誘電率、 k はボルツマン定数、 T は温度、 κ_T は液体の等温圧縮率を示している。

表 5.3: 散乱長計算に必要なパラメーター

パラメーター	値
λ [nm]	430
n	1.499 ± 0.001
k [J/K]	1.381×10^{-23}
T [K]	296
κ_T [/Pa] [30]	$(7.743 \pm 0.0035) \times 10^{-10}$
δ [31]	0.31 ± 0.01

Cabannes は式 (5.22) のように、 R と R_{iso} の関係を示した。

$$\frac{R}{R_{\text{iso}}} = \frac{6 + 6\delta}{6 - 7\delta} \quad (5.22)$$

一方で、 $\rho(\partial\varepsilon/\partial\rho)_T$ は経験則より計算することが一般的であり、有機溶媒に対しては Eykman 式より、

$$\rho \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho} \right)_T = \frac{(n^2 - 1)(2n^2 + 0.8n)}{n^2 + 0.8n + 1} \quad (5.23)$$

と、液体の屈折率 n で計算することができる。よって、有機溶媒中の散乱長は Einstein-Smoluchowski-Cabannes 方程式から、式 (5.24) のようにかける。

$$l_S = \left[\frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left\{ \frac{(n^2 - 1)(2n^2 + 0.8n)}{n^2 + 0.8n + 1} \right\}^2 kT\kappa_T \frac{6 + 3\delta}{6 - 7\delta} \right]^{-1} \quad (5.24)$$

散乱長の理論値

式 (5.7) と表 5.2 を用いると、温度 20°C、波長 430 nm の時の LAB-LS+Bis-MSB の屈折率は、 $n = 1.499 \pm 0.001$ と求まる。この値を用いて、式 (5.24) から散乱長を計算する。 κ_T, δ などは、LAB-LS+Bis-MSB での測定がないため、LAB 単体での性能測定 [30, 31] で求められた値を使う。計算に使う値を表 5.3 に記す。

計算結果として、 $l_S = 28.3 \pm 2.1$ m が得られた。

ミー散乱 (Mie scattering)

入射光の波長 λ が、液体シンチレータの粒子半径 a とほぼ同等な大きさのとき ($\lambda \sim a$)、ミー散乱が生じる。粒子の大きさが入射光の波長と同程度なため、散乱だけでなく光の回折が生じ始める。図 5.10 にミー散乱の角度分布を示す。ミー散乱は等方的な散乱ではなく、粒子の大きさが大きくなるほど前方散乱が多くなる。

5.5.2 吸収・再発光

前述したように、液体シンチレータのシンチレーション光は主に溶質分子から放出される。本研究で使用する液体シンチレータは、LAB-LS+Bis-MSB である。このとき、最終的なシンチレーション

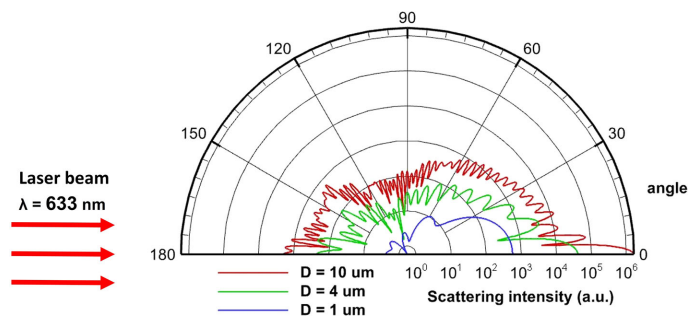


図 5.10: ミー散乱の角度分布 [32]

光は溶質分子の一つの Bis-MSB である。図 5.11 に、分光蛍光光度計で測定した LAB-LS+Bis-MSB の吸収スペクトルと発光スペクトルを示す。図 5.11 で示した灰色の範囲は、吸収スペクトルと発光スペクトルが重なっている部分である。この波長領域では、Bis-MSB によって発光されたシンチレーション光を Bis-MSB が自己吸収し、再発光する。このような現象を、吸収・再発光と呼ぶ。

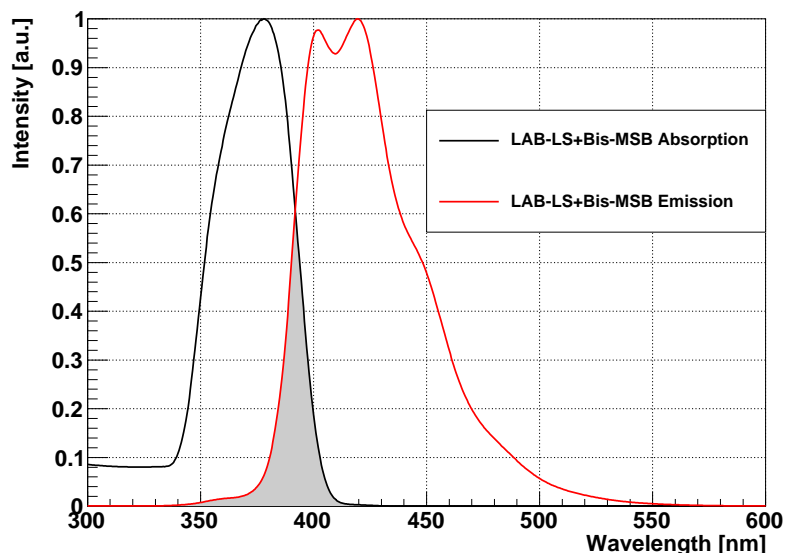


図 5.11: LAB-LS+Bis-MSB の吸収スペクトルと発光スペクトル。黒線が吸収スペクトル (蛍光波長 420 nm)、赤線が発光スペクトル (励起波長 290 nm) を示している。また、灰色の範囲は吸収スペクトルと発光スペクトルが重なっており、吸収・再発光を起こす範囲である。

5.5.3 セットアップ

光の散乱の測定は、図 5.12、5.13 のようなセットアップで行う。本研究では、液体シンチレータとして LAB-LS+Bis-MSB を使用した。光源には窒素/色素レーザーを用いる。色素を入れ替えることで、出力される光の波長を変えることができる。レーザーのパルスレートは約 15 Hz である。光を液体シンチレータの入った容器に入射させ、容器内での液体シンチレータ中の散乱光を PMT によ

て検出する。また、PMT を容器の前後に設置することで、入射光と透過光をモニターする。これらの PMT のサイズは 2-inch であり、印加電圧はモニター用 PMT が 1300 V、散乱用 PMT が 1800 V、透過用 PMT が 1600 V である。窒素/色素レーザーは発光する際に、電磁波を放出しベースラインにノイズが生じる。このノイズを防ぐために、光ファイバーに通すことで光による信号を遅らせる。光ファイバーにレーザー光を入射させるために、両凸レンズ (SBX NewPort 製) を用いて集光した。光ファイバーを通過した光はコネクタ出口から大きく広がっているため、コネクタ後のコリメートレンズ (A355TA シグマ光機製) によって光軸の広がりを抑える。また、スプリッター前の絞りと液体シンチレータ容器前の絞りによって光軸の広がりを抑える。レーザーポインターを光ファイバーに通した光を使用して、光軸の広がりを調節した。円盤内部での反射を防ぐために、入射窓の大きさ (直径 8 mm) に対して光軸の大きさを約 1 mm に調節した。この光軸は透過窓においても、約 1.5 mm であることを確認した。後述する散乱光の偏光成分を測定する際には、散乱用 PMT の前に設置されているスリットの間、偏光フィルター (SPF-50C-32 シグマ光機製) を設置した。各実験装置の詳細は、後述する。

本研究では、PMT からの信号を AMP にて増幅し、Waveform digitizer で波形取得を行う。AMP には 12-ch PM AMP (カイズワークス製) を使用した。この AMP によって信号が約 10 倍に増幅される。Waveform digitizer については後述する。モニター用 PMT の信号をトリガーとして、散乱用 PMT と透過用 PMT の信号を取得する。これらの信号の取得条件を、図 5.14 に示す。モニター用 PMT での信号のピークが閾値を超えた時、波形のピークから ± 30 ns の間の散乱用 PMT と透過用 PMT の信号を、同一レーザー光からの信号として取得する。

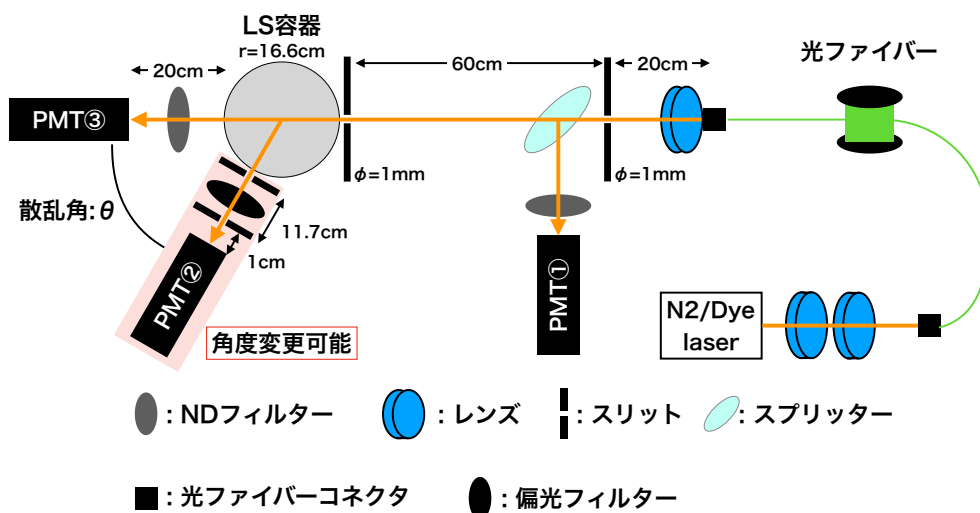


図 5.12: 光の散乱測定におけるセットアップの概要図。PMT ①はモニター用、PMT ②は散乱用、PMT ③は透過用である。赤色の範囲はロータリーステージによって角度を変えることができる。後述する偏光成分測定を行う際には、散乱用 PMT の前のスリットの間、偏光フィルターを設置する。 r は液体シンチレータ容器の半径、 ϕ はスリットの大きさを示している。

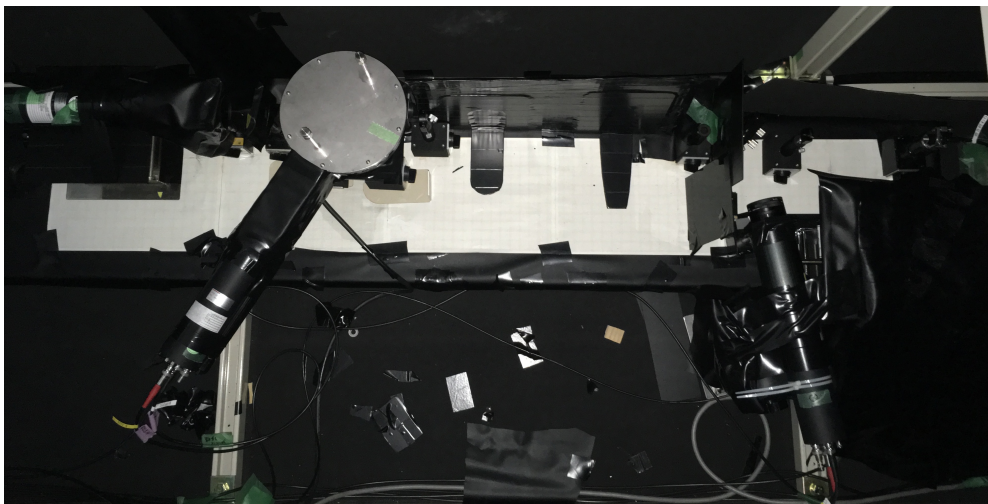


図 5.13: 光の散乱測定におけるセットアップ

5.5.4 実験装置

窒素/色素レーザー

光源に使用したのは、Laser Photonics, Inc. の LN203C 窒素/色素レーザーである。カタログ性能を表 5.4 に記す。また、窒素レーザーに設置されている色素モジュールの概要図について、図 5.15 に示す。窒素レーザーからの光をミラーで反射させ、色素が入っている容器に入射させることで、色素から波長が変換された蛍光が発する。色素容器側の回折格子を調節することで、色素の波長が強め合う方向を出口のピンホールへと向ける。回折格子と出力結合鏡の間を往復することで、光の強度が増幅され、色素の発光波長で強められた光が放出される。

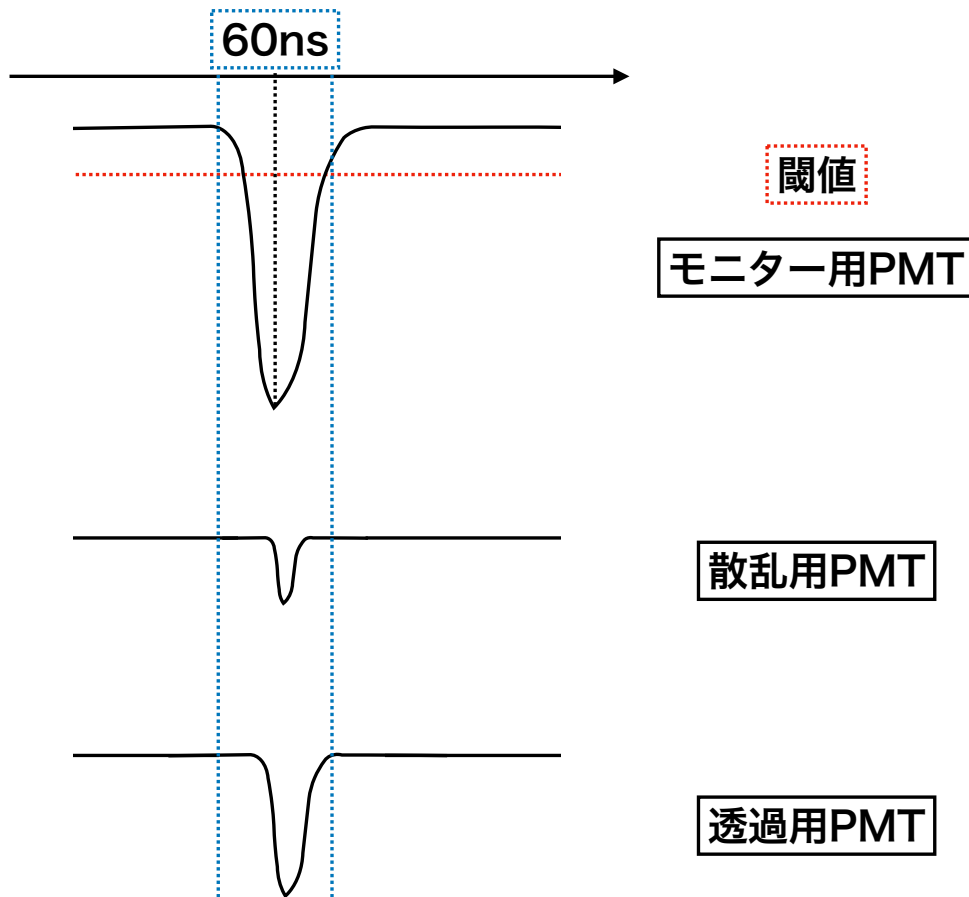


図 5.14: 光の散乱測定における波形取得。モニター用 PMT の波形のピークが閾値を超えた時、波形のピークから ± 30 ns の間の散乱用 PMT と透過用 PMT の信号を同一レーザー光による信号として取得する。

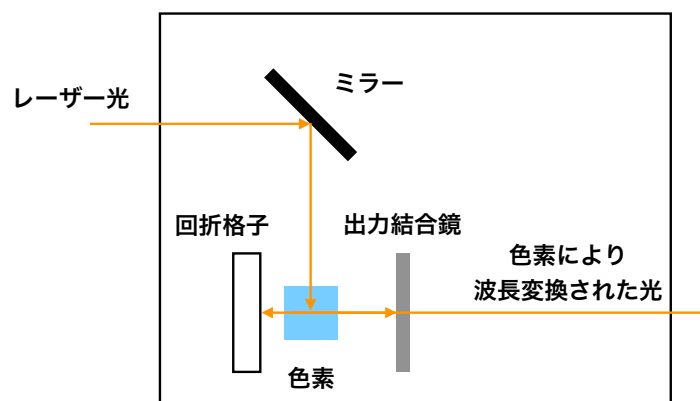


図 5.15: 色素モジュールの概要図。レーザー光が色素に入射すると、色素が波長変換した蛍光を発生し、この光を回折格子を調節して色素の発光波長だけの強度を強める。出力結合鏡と回折格子を往復することによって強度が増幅され、最終的にある特定の波長で強められた光が放出される。

表 5.4: 窒素/色素レーザーのカタログ性能

	LN203C	dye
Spectral Output [nm]	337.1	357~710
Spectral Band Width [nm]	0.1	1~3
Pulse Width [ps] (FWHM)	600	300~500
Energy/Pulse [μ J]	100	dye dependent
Conversion Efficiency [%]	N/A	15@500 nm
Energy/Stability [%] @10Hz	3	3
Peak Power [kW]	167	-
Repetition Rate [Hz] (Maximum)	50	50
Maximum Average Power [mW]	5	dye dependent
Beam Dimensions (hor. \times ver.)	5.5 \times 3.1	2.5 mm at exit
From Rate [L/min] @10 Hz	1.5 L	-
Trigger In	TTL	-
Trigger Out	TTL	-
Command Jitter [nm]	± 2	-
Input Voltage [V]	110	-
Dimensions [cm]	71.3 \times 21.3 \times 13.3	-
Weight [kg]	8	-

本研究では、3 種類の色素を使用した。これらの色素についての性能を表 5.5 にまとめる。また、分光蛍光光度計で測定した各色素の発光スペクトルを図 5.16 に示す。これらの色素は LN203C 窒素/色素レーザーの取扱説明書 [33] についていた、色素リストを参考にして作成した。

表 5.5: 使用した色素の主な性能

番号	色素	溶媒	発光波長 [nm](ピーク)
dye3	S420	エタノール/水 (1:4)	425
dye4	C440	エタノール	437
dye5	C480	エタノール	470

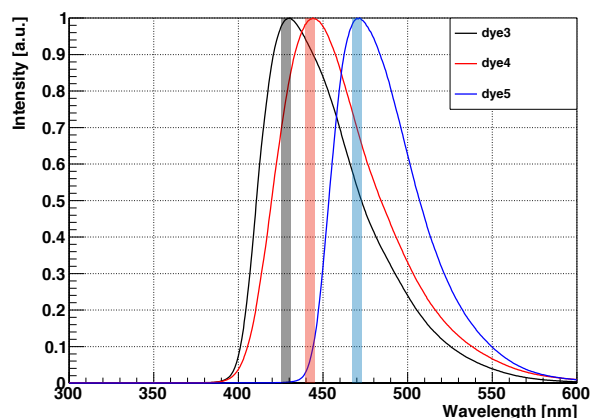


図 5.16: 使用した色素の発光スペクトル。各データは最大値で規格化されており、黒線が dye3、赤線が dye4、青線が dye5 を示している。各色素の励起波長は窒素レーザーの発光波長である 337 nm である。

レーザー光が光ファイバーを通り、液体シンチレータ容器に入射する際の偏光特性を調べる。スプリッター直後に偏光フィルターを置き、45° ずつ回転させながら測定を行い透過用 PMT の ADC 値を求める。表 5.6 に偏光フィルターの各角度における、透過用 PMT の ADC 値を記す。

表 5.6: レーザー光の偏光特性

角度 [°]	ADC 値 [ch]
0	574 ± 2.47
45	622 ± 2.69
90	666 ± 3.00
135	637 ± 2.80

このとき、光の偏光度はストークスパラメーターによって評価することができる。偏光フィルター

の角度 θ における光の強度を $I(\theta)$ とおくと、ストークスパラメータは以下のように表される。ただし $I(L,R)$ は、左回り、右回り円偏光の強度を示している。

$$S_0 = I(0^\circ) + I(90^\circ) \quad (5.25)$$

$$S_1 = I(0^\circ) - I(90^\circ) \quad (5.26)$$

$$S_2 = I(45^\circ) - I(135^\circ) \quad (5.27)$$

$$S_3 = I(L) + I(R) \quad (5.28)$$

本研究では、位相子を用いた円偏光の測定を行っていないため、円偏光がない $S_3=0$ の仮定のもとで議論していく。これらを用いて偏光度 DOP(Degree of Polarization) は式 (5.29) で表される。

$$\text{DOP} = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0} \quad (5.29)$$

DOP は $0 \leq \text{DOP} \leq 1$ の値を取り、 $\text{DOP} = 0$ が無偏光、 $\text{DOP} = 1$ が完全偏光を示す。表 5.6 の結果から式 (5.29) を計算すると

$$\text{DOP} = 0.078 \pm 0.003 \quad (5.30)$$

となり、ほぼ無偏光であることが確認できた。このため、本研究ではレーザー光は無偏光であるとして、測定を行なった。

光量測定

本研究では波形取得に、Waveform digitizer DT5751(CAEN 製)を使用した。Waveform digitizer はアナログメモリで波形のサンプリングを行い、Flash ADC によってデータのデジタル化が行われる。主な性能を表 5.7 にまとめる。また Waveform digitizer で得られた波形を、積分することで電荷量 (ADC 値)[ch] を求める。このときの ADC 値の求め方を、図 5.17 に示す。

表 5.7: Waveform digitizer の性能

DT5751	
	2/4 チャンネル (MCX 50 Ω)
アナログ入力	シングルエンド 入力範囲 : 1 V _{pp} 帯域幅 : 500 MHz
デジタル変換	解像度 : 10 ビット サンプリングレート : 各チャンネルで同時に 200 MS/s ~ 1 GS/s
トリガー	外部トリガー : TRG.IN の信号 (LEMO 50 Ω , NIM/TTL) セルフトリガー : 内部閾値によるセルフトリガー
USB インターフェイス	USB2.0 に準拠、最大 30 MB/s の転送速度

本研究では、それぞれの PMT からの信号の波形を Waveform digitizer で取得するため、ADC 値と光量の対応を各チャンネルでキャリブレーションする必要がある。キャリブレーションには PMT のダークノイズを使用した。PMT に高電圧をかけた時、光が入射していない状態でも主に 1p.e. 信

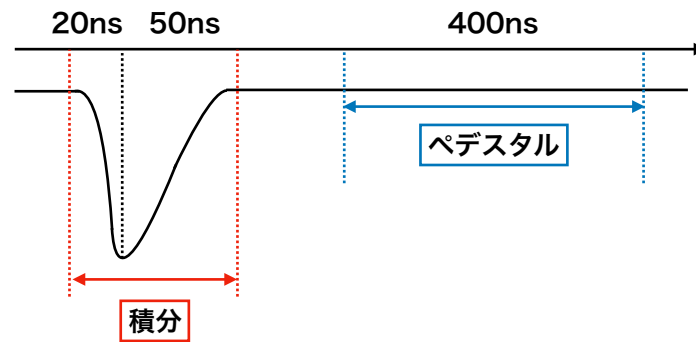


図 5.17: 波形の電荷量 (ADC 値) の求め方。波形のピークから前 20 ns、後 50 ns の計 70 ns を積分する。一方で、ペDESTALは後ろ 400 ns の平均をとることで求める。波形の ADC 値は、ペDESTALから積分値を引くことで求めることができる。

号を検出することがあり、この信号をダークノイズと呼ぶ。ダークノイズは下記のような原因から発生する [12]。

- 熱電流放出
- 漏洩電流
- 残留ガスのイオン化
- 宇宙線、ガラス中の放射性元素からの放射線、環境 γ 線によるガラスの発光

このため、ダークノイズを測定し 1p.e. 相当のピークをガウス関数でフィットすることで、各チャンネルの 1p.e. 相当に対応する ADC 値 [ch] を求める。結果を図 5.18、5.19 と表 5.8 に示す。このとき、フィット範囲からくる誤差は $\pm 3.0\%$ である。

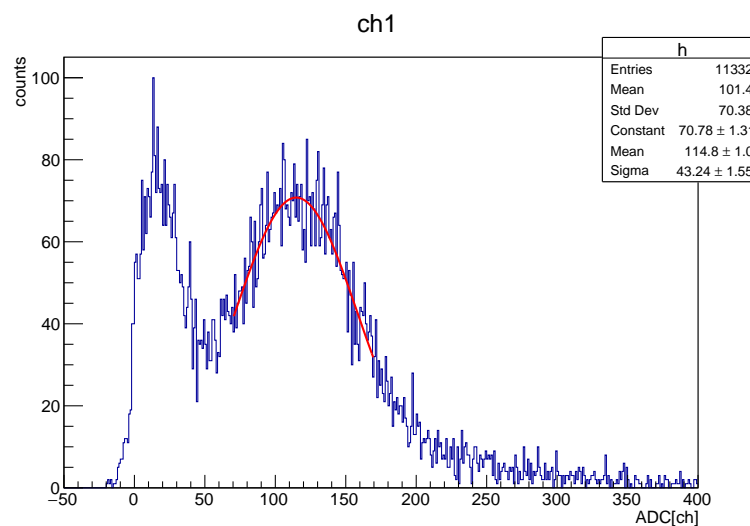


図 5.18: 散乱用 PMT のチャンネルでのキャリブレーション結果。0 ch 付近のピークは Waveform digitizer の電氣的ノイズ、ガウス関数 (赤線) でフィットした範囲は 1p.e. に相当する。

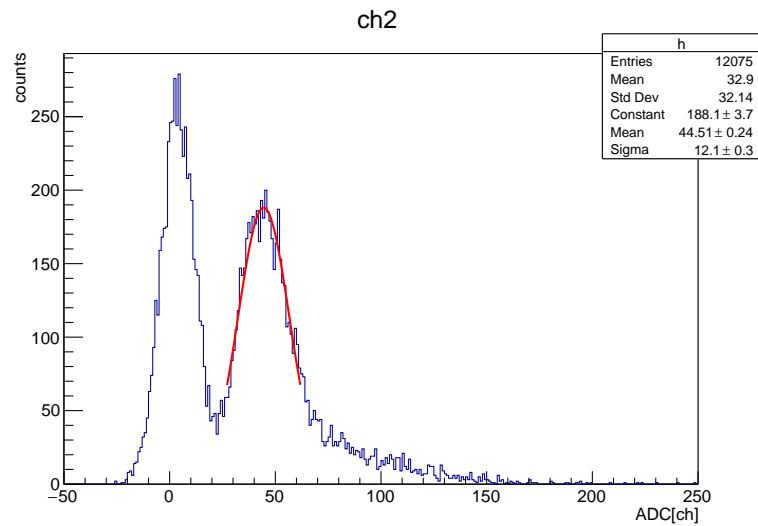


図 5.19: 透過用 PMT のチャンネルでのキャリブレーション結果。0 ch 付近のピークは Waveform digitizer の電氣的ノイズ、ガウス関数 (赤線) でフィットした範囲は 1p.e. に相当する。

表 5.8: Waveform digitizer のキャリブレーション結果

チャンネル	ADC 値 [ch]	Calibration [p.e./ch]
散乱用 PMT	114.8 ± 1.0	$(8.7 \pm 0.1) \times 10^{-3}$
透過用 PMT	44.51 ± 0.24	$(2.25 \pm 0.01) \times 10^{-2}$

フォトンカウンティング

光の散乱を測定する際に、フォトンカウンティングを使用する。

PMT の光電面に入射する光量が多い場合、光電面から放出された光電子による出力信号は、パルス間隔が短いため信号が重なり合うアナログ波形となる。一方で入射光量が少ない場合、ゆらぎの割合が増えていき離散的なパルスになるデジタル波形になる。このパルスを 2 値化して係数する方法をフォトンカウンティングと呼ぶ。フォトンカウンティングを行う際には、ノイズ除去が重要になるため外部光を遮断するために暗箱内で実験することが必要になる。

光電面から光電子が放出される確率は、事象が起こる回数を n 、 n 回事象が起こる確率を $P(n)$ 、事象が起こる回数の平均値を λ とおくと、式 (5.31) のようにポアソン分布に従う。

$$P(n) = \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} \tag{5.31}$$

このとき、光電面から放出される光電子が 2 個以上である確率は式 (5.32) のように表す。

$$\begin{aligned} \sum_{n=2}^{\infty} P(n) / \sum_{n=0}^{\infty} P(0) &= \sum_{n=2}^{\infty} \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} / \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} \\ &= \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} - \frac{\lambda^0 e^{-\lambda}}{0!} - \frac{\lambda^1 e^{-\lambda}}{1!} \right) / \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\lambda^n}{n!} e^{-\lambda} \\ &= 1 - (1 + \lambda) / \left(1 + \lambda + \frac{\lambda^2}{2} + \dots \right) \end{aligned} \tag{5.32}$$

よって平均値を 0.1 以下にすることで、PMT の単一パルス内に光電子が 2 個以上ある確率は 0.5% 以下になる。フォトンカウンティングは、この状態でデジタル方式で計数することである。具体的な測定方法としては、適当な閾値を設定することで閾値を超えた信号を計数することである。図 5.20 に印加電圧と計数率の関係を示す。印加電圧に対して計数率が変化しない領域 (B) をプラトー領域と呼ぶ。プラトー領域に閾値を設定することで検出効率を下げることなく、ノイズを除去することができる。また、フォトンカウンティングでは設定電圧がプラトー領域にある場合、印加電圧の変動に対して出力計数には影響しない。このため、フォトンカウンティングは、PMT の特性変動に対して安定である。

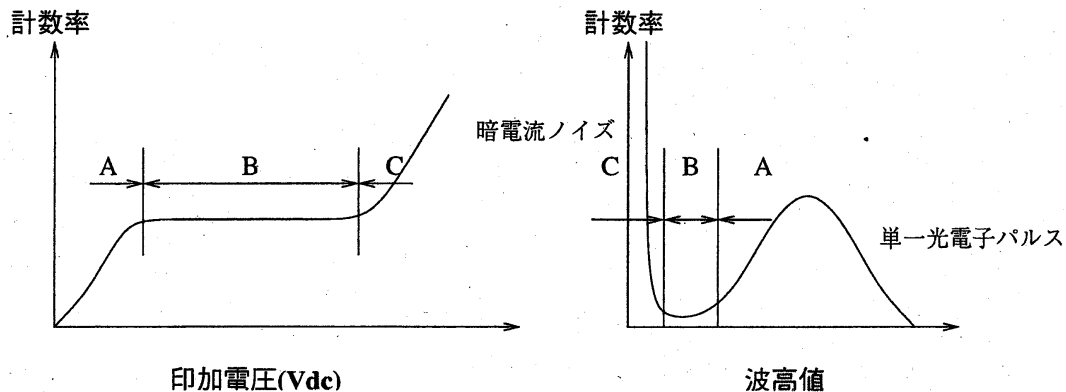


図 5.20: 印加電圧・波高値と計数率の関係

純化装置

液体シンチレータ中に不純物が混入していると、液体シンチレータの溶媒によって生じるレイリー散乱が、不純物によって生じるミー散乱に埋もれてしまう可能性がある。このため、実験に使用する液体シンチレータ中の不純物を取り除くために、図 5.21 のような純化装置を用いた。フィルターは PALL 社製マイクロ・クリーンチェンジ (50 nm) を使用した。また、酸素は消光効果をもつため、液体シンチレータ中の酸素を取り除くために、窒素置換を行いながら純化作業を行なった。

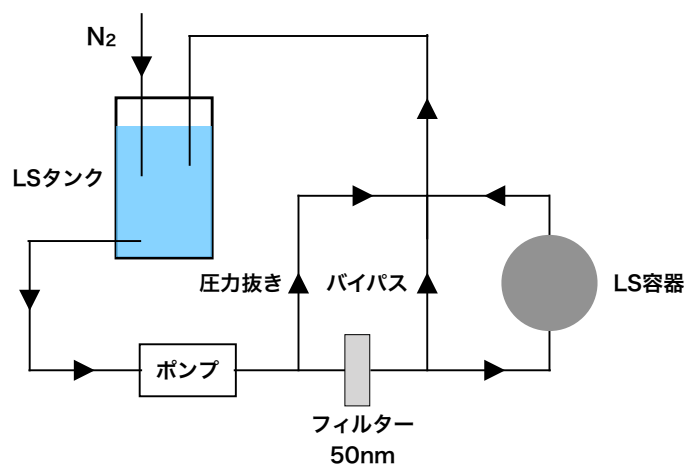
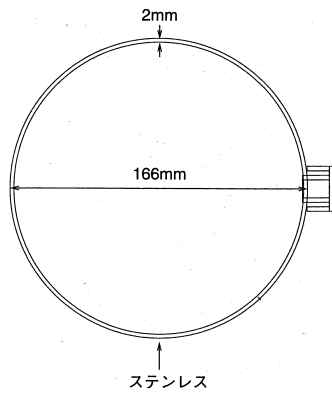


図 5.21: 純化装置の概要図

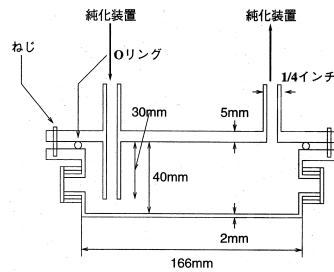
液体シンチレータ容器

レイリー散乱は、入射光軸からの角度 θ (散乱角) に対して $1 + \cos^2\theta$ の角度依存性を持つ。このため光の散乱を測定する際には、複数の散乱角で測定を行うことで角度依存性を確認することができる。また角度依存性を確認することができれば、一部の角度依存性から全立体角で積分をすることで、全散乱光量を見積もることができる。

よって、図 5.22 のような液体シンチレータの容器を使用した。液体シンチレータ中の光を観測できるように、 15° ごとに窓 (図 5.23) が設置されている。この窓の素材は石英ガラスであり、今回測定する波長領域 (400~500 nm) では一定の透過率・屈折率を持つ。容器はステンレス製であるため、容器内部では光の反射が起きる。光の反射を防ぐために、内部は遮光テープを貼り付けている。



(a) 液体シンチレータ容器の概形



(b) 液体シンチレータ容器の断面図

図 5.22: 液体シンチレータ容器の概要図。窓は 15° ごとに取り付けており、計 24 個の窓がある。容器がステンレスでできているため、容器内での光の反射を防ぐために、容器内部を遮光効果があるブラックテープで覆ってある。また、純化装置からの液体シンチレータの挿入口が窓の高さまで伸びているため、挿入口の位置が光軸の妨げにならないよう、常に散乱窓の対角上にあるように円盤を設置している。

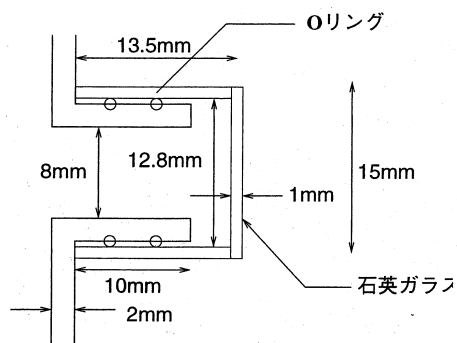


図 5.23: 液体シンチレータ容器に設置した窓の概要図

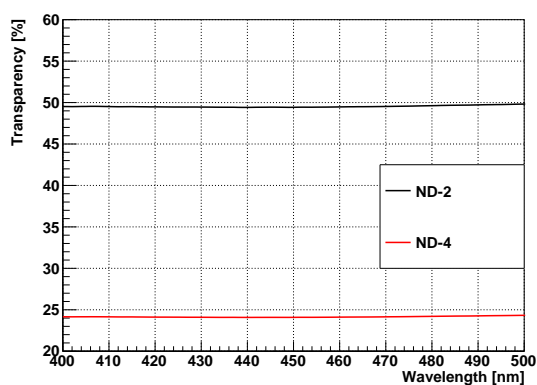
ND フィルター

ND フィルターは、光を減衰させる役割を持つ。ガラス基板の上に数種類の金属の薄膜を蒸着したものであり、金属薄膜間で反射と吸収を繰り返すことでフィルターに入射した光を減衰させる。単一金属の薄膜を蒸着した際には、特定の波長でのみ光が減衰される。幅広い波長領域で一様な透過率を持つためには、複数の金属薄膜が必要になる。本研究では、モニター用と透過用 PMT の前に ND フィルターを設置することで、Waveform digitizer のレンジに収まるように光の強度を調節するために用いた。

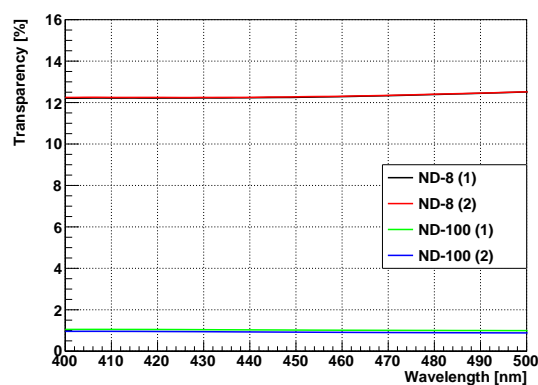
今回使用した ND フィルターはケンコー・トキナー製である。ND フィルターには ND-X(X は数字) と番号付けがされており、光量を $1/X$ に減少させる。本研究で使用した ND フィルターを、分光光度計を用いて透過率の較正を行なった。液体シンチレータの透過率を測定した時とは異なり、フィルターの透過率を測定する際の基準値は空気となる。測定結果を表 5.9 と図 5.24 に示す。測定誤差は $\pm 0.3\%$ である。

表 5.9: 各 ND フィルターの透過率

ND フィルター	透過率 [%]			
	波長 [nm]	425	437	470
ND-2		49.5	49.4	49.5
ND-4		24.1	24.1	24.2
ND-8 (1)		12.2	12.2	12.3
ND-8 (2)		12.2	12.3	12.3
ND-100 (1)		1.05	1.03	1.01
ND-100 (2)		0.95	0.93	0.90



(a) ND-2、ND-4 の透過率



(b) ND-8、ND-100 の透過率

図 5.24: 各 ND フィルターの透過率

光電子増倍管 (PMT)

本研究では、モニター用と透過用、散乱用の 3 本の 2-inchPMT を使用した。使用した PMT は浜松ホトニクス製であり、カタログ性能を表 5.10 に、応答スペクトルを図 5.25 に示す。

表 5.10: 使用した PMT のカタログ性能

2 インチ	
型名	H7195
光電面材質	バイアルカリ
窓材質	ホウケイ酸ガラス
有効波長領域 [nm]	300~650
最大感度波長 [nm]	450
供給電圧 [V]	2000
ゲイン (Typ.)	3.0×10^6
暗電流 [nA] (Typ.)	10
上昇時間 [ns] (Typ.)	2.7
電子走行時間 [ns] (Typ.)	40
T.T.S [ns] (Typ.)	1.1
パルスリニアリティ 5% 以内 [mA] (Typ.)	< 110

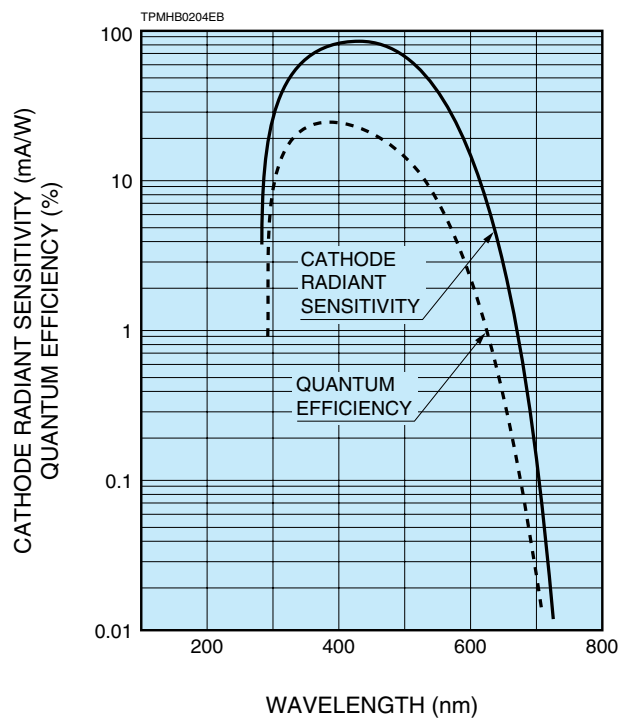


図 5.25: 使用した PMT の応答スペクトル [34]

同じ型番の PMT を使用しているが、量子効率や収集効率は個体差があると考えられる。フォトンカウンティング領域における入射光子数 (N) に対する計数值 (n) の割合を、フォトンカウンティングの検出効率と呼ぶ。検出効率 D_e は、収集効率 (α) と量子効率 (η) の積から求めることができる ($D_e = n/N = \alpha \times \eta$)。この個体差を補正するために、それぞれの PMT の検出効率の相対的な違いを調べる。散乱用 PMT(No.RD8273) と透過用 PMT(No.RD8651) を入れ替えて測定を行うことで、各 PMT の個体差を調べる。表 5.11 に各 PMT 入れ替え前後の、フォトンカウンティングで観測された計測数 n_s とモニター用 PMT の ADC 値 Q_m [ch] を示す。

表 5.11: 散乱用と透過用 PMT を入れ替え前後の測定結果

	入れ替え前 (RD8273)		入れ替え後 (RD8651)	
	$n_{s,1}$	$Q_{m,1}$	$n_{s,2}$	$Q_{m,2}$
1	312	7024	245	6764
2	302	6780	253	6634
3	-	-	232	6720
Ave.	306	6902	243.3	6706

よって、散乱用 PMT を基準とすると透過用 PMT の相対的な検出効率の違いは式 (5.33) のように求まる。計測数や ADC 値の誤差より、測定誤差は $\pm 3.3\%$ である。

$$\begin{aligned} \frac{D_e(2)}{D_e(1)} &= \frac{\alpha_2 \times \eta_2}{\alpha_1 \times \eta_1} = \frac{n_{s,2}/Q_{m,2}}{n_{s,1}/Q_{m,1}} \\ &= \frac{243.3/6706}{306/6902} = 0.82 \end{aligned} \quad (5.33)$$

5.5.5 解析方法

ある散乱角における散乱確率は、散乱体積での入射光子数と散乱光子数の比を取ることによって求まる。求めた散乱確率の角度依存性から、散乱長を求めていく。図 5.26 に液体シンチレータでの散乱の概要図を示す。ここで、散乱角 θ は透過用 PMT と散乱用 PMT の角度、 N_0 は液体シンチレータへの入射光子数、 N_1 は散乱体積への入射光子数、 N_2 は透過用 PMT で観測される透過光子数、 N_S は散乱体積からの散乱光子数、 $N_{S,mes}$ は散乱用 PMT で観測される散乱光子数を表している。

まずは、液体シンチレータへの入射光子数と透過光子数について考えていく。 N_0 と N_2 は、式 (5.34)、(5.35) のように表される。

$$N_0 = \text{ADC[ch]} \times \text{calib}(0\text{ch})[\text{p.e./ch}] \times \frac{1}{\alpha_0} \times \frac{1}{\eta_0} \times \frac{1}{R_{\text{splitter}}} \times \frac{1}{T_{\text{NDfilter}0}} \times T_{\text{splitter}} \quad (5.34)$$

$$N_2 = \text{ADC[ch]} \times \text{calib}(2\text{ch})[\text{p.e./ch}] \times \frac{1}{\alpha_2} \times \frac{1}{\eta_2} \times \frac{1}{T_{\text{NDfilter}2}} \quad (5.35)$$

このとき、 α は PMT の収集効率、 η は PMT の量子効率、 R_{splitter} はスプリッターの反射率、 T_{splitter} はスプリッターの透過率、 T_{NDfilter} は ND フィルターの透過率を表している。

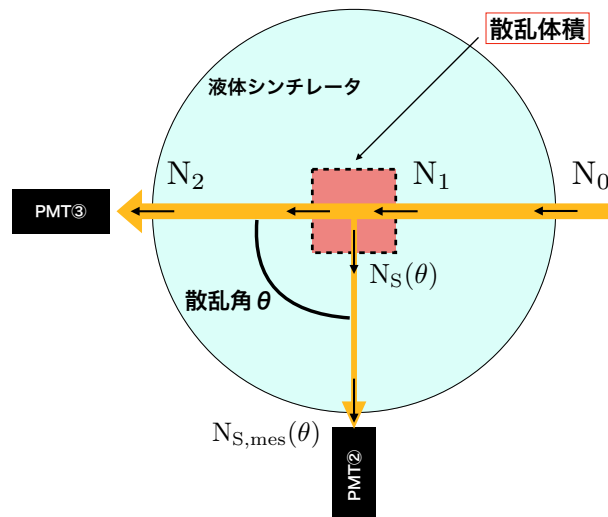


図 5.26: 液体シンチレータでの散乱の概要図

液体シンチレータ容器の半径を r 、窓の石英ガラスの透過率を T_w 、液体シンチレータの減衰長を Λ とおくと、液体シンチレータでの入射光子数 (N_0) と透過光子数 (N_2) は式 (5.36) のような関係を持つ。

$$N_2 = N_0(T_w)^2 e^{-2r/\Lambda} \tag{5.36}$$

一方で、液体シンチレータへの入射光子数 (N_0) と散乱体積への入射光子数 (N_1) は式 (5.37)、散乱体積での散乱光子数 (N_S) と散乱用 PMT で観測される光子数 ($N_{S,mes}$) は式 (5.38) のような関係を持つ。

$$N_1 = N_0 T_w e^{-r/\Lambda} \tag{5.37}$$

$$N_{S,mes}(\theta) = N_S(\theta) T_w e^{-r/\Lambda} \tag{5.38}$$

ある散乱角における散乱確率は、散乱体積での入射光子数と散乱光子数の比を取ることで求めるため、式 (5.36)、(5.37)、(5.38) を用いて、式 (5.39) と書ける。

$$\frac{N_S(\theta)}{N_1} = \frac{N_{S,mes}(\theta)/(T_w e^{-r/\Lambda})}{N_0 T_w e^{-r/\Lambda}} = \frac{N_{S,mes}(\theta)}{N_0 (T_w)^2 e^{-2r/\Lambda}} = \frac{N_{S,mes}(\theta)}{N_2} \tag{5.39}$$

よって、ある散乱角における散乱確率を求めるためには、 N_2 と $N_{S,mes}$ が必要である。

散乱用 PMT ではフォトンカウンティングをしており、PMT において光電面から光電子が放出される確率は式 (5.31) のようにポアソン分布に従う。透過用 PMT での観測数を n_T 、散乱用 PMT での単一光子パルスの観測数を n_S 、測定ごとの観測される光電子の平均値を $\mu(\theta)$ とおくと、平均値は式 (5.40) のように求まる。

$$\begin{aligned}
 P(0) &= e^{-\mu(\theta)} \\
 \Rightarrow \mu(\theta) &= -\ln(P(0)) = -\ln\left(\frac{n_T - n_S}{n_T}\right) \\
 &\sim \frac{n_S}{n_T} \quad (n_T \gg n_S)
 \end{aligned}
 \tag{5.40}$$

これより、散乱用 PMT で観測される光子数は式 (5.41) のように書ける。

$$N_{S,mes}(\theta) = \mu(\theta) \times \frac{1}{\alpha_1} \times \frac{1}{\eta_1} = \frac{n_S}{n_T} \times \frac{1}{\alpha_1} \times \frac{1}{\eta_1}
 \tag{5.41}$$

散乱確率を求めるために必要なパラメーターである、 N_2 と $N_{S,mes}$ を求めることができた。しかし、立体角や散乱体積を考慮しなければいけない。これらを考慮するとき、入射光の大きさ (1 mm) や散乱体積内部における散乱点の位置による散乱角の違いは、十分小さいものとして無視をする。

スリットによる立体角

散乱用 PMT の前には、図 5.27 のようにスリットが設置されている。このため、散乱点からみたスリットの占める立体角 $\Delta\Omega$ は、スリットの面積を散乱点からスリットまでの距離を半径とした球の表面積で割ったものであるため、式 (5.42) であると考えられる。

$$\Delta\Omega = \frac{1 \times 4}{(114.5 + 117)^2} \text{ [str]}
 \tag{5.42}$$

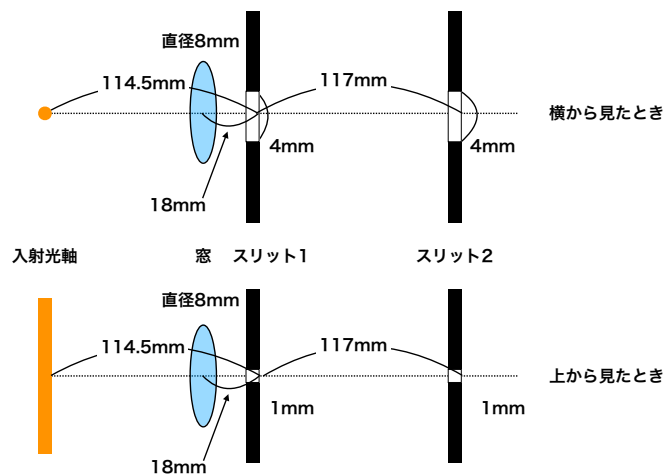


図 5.27: 散乱用 PMT の前に設置したスリットの位置

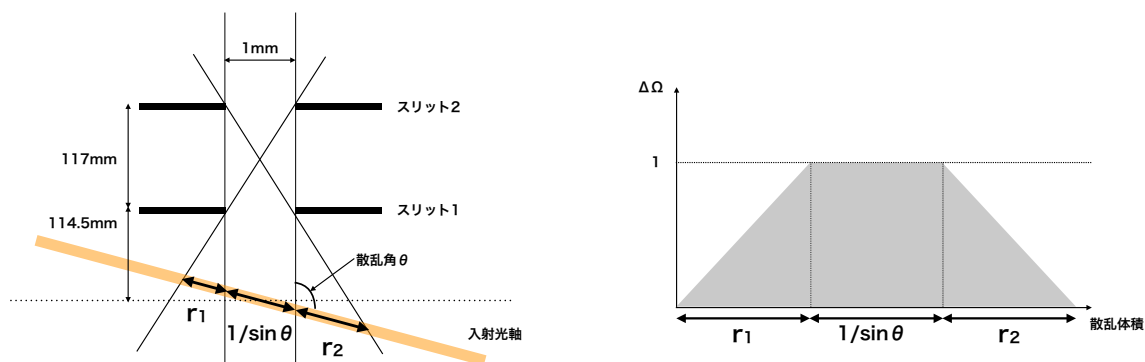
散乱体積の広がり

入射光軸とスリットが平行であるとき (散乱角 $\theta = 90^\circ$)、散乱体積はスリットからみた長さ $(1 + 2 \times \frac{114.5}{117})$ mm の部分になる。しかし、入射光軸とスリットが平行でないとき ($\theta \neq 90^\circ$)、図 5.28 のように散乱体積が広がる。このときの広がり具合は式 (5.43) のように表されるため、散乱体

積の広がりは式 (5.44) で表される。

$$r_1 \sim r_2 = \frac{114.5}{117} \times \frac{1}{\sin\theta} \text{ [mm]} \tag{5.43}$$

$$\begin{aligned} \Delta l &= \frac{1}{\sin\theta} + \frac{1}{2} \times \frac{1}{\sin\theta} \times \frac{114.5 \times 2}{117} \\ &= \frac{114.5 + 117}{117} \times \frac{1}{\sin\theta} \text{ [mm]} \end{aligned} \tag{5.44}$$



(a) スリットから見える散乱体積の変化

(b) 散乱体積の広がり

図 5.28: 散乱体積の変化

よって、散乱角 θ における散乱確率は式 (5.33)、(5.35)、(5.41)、(5.42)、(5.44) を用いると、式 (5.45) のように補正することで求まる。

$$\begin{aligned} \frac{N_S(\theta)}{N_1} &= \frac{N_{S,mes}(\theta)}{N_2} \times \frac{1}{\Delta\Omega} \times \frac{1}{\Delta l} \\ &= \frac{\frac{n_S}{n_T} \times 0.82}{ADC \times \text{calib}(2ch) \times \frac{1}{T_{NDfilter}}} \times \frac{(114.5 + 117) \times 117}{4} \times \sin\theta \end{aligned} \tag{5.45}$$

式 (5.19) より、散乱確率の角度依存性を式 (5.46) でフィットする。

$$\frac{N_S(\theta)}{N_1} \text{ [/mm/str]} = R \times \left(1 + \frac{1 - \delta}{1 + \delta} \cos^2\theta \right) \tag{5.46}$$

このフィットより、液体シンチレータの全散乱確率 R_S [/mm] は式 (5.47) のように求めることができる。

$$\begin{aligned} R_S &= \iint \frac{N_S(\theta)}{N_1} d\Omega \\ &= \iint \left\{ R \times \left(1 + \frac{1 - \delta}{1 + \delta} \cos^2\theta \right) \right\} d\Omega \\ &= \frac{8\pi}{3} R \frac{2 + \delta}{1 + \delta} \end{aligned} \tag{5.47}$$

また、散乱長 l_s は式 (5.12) を基に考えると、式 (5.48) で求まる。

$$\begin{aligned}
 l_s &= \left[\iint \frac{N_s(\theta)}{N_1} d\Omega \right]^{-1} \\
 &= \frac{1}{R_s} \text{ [mm]} \\
 &= \frac{10^{-3}}{\frac{8\pi}{3} R \frac{2+\delta}{1+\delta}} \text{ [m]}
 \end{aligned} \tag{5.48}$$

偏光成分

4.4.1 で述べたように、レイリー散乱の散乱光は偏光成分を持っているため、偏光成分について確認する。散乱確率の計算は上述の通り。この時の各偏光成分の散乱確率は式 (5.16) を基にして、式 (5.50) でフィットを行うことで確認する。(A と B は観測量)

$$R_{\parallel}(\theta) = \frac{A}{2} \cos^2 \theta + \frac{B}{2} \tag{5.49}$$

$$R_{\perp}(\theta) = \frac{A}{2} + \frac{B}{2} \tag{5.50}$$

5.5.6 測定結果

図 5.29 に測定結果を示す。左図が散乱用 PMT の ADC 値、右図が透過用 PMT の ADC 値を示している。透過用 PMT には 10 20p.e. ほど観測されるため、ガウス関数でフィットし得られた中央値を透過用 PMT の ADC 値とした。

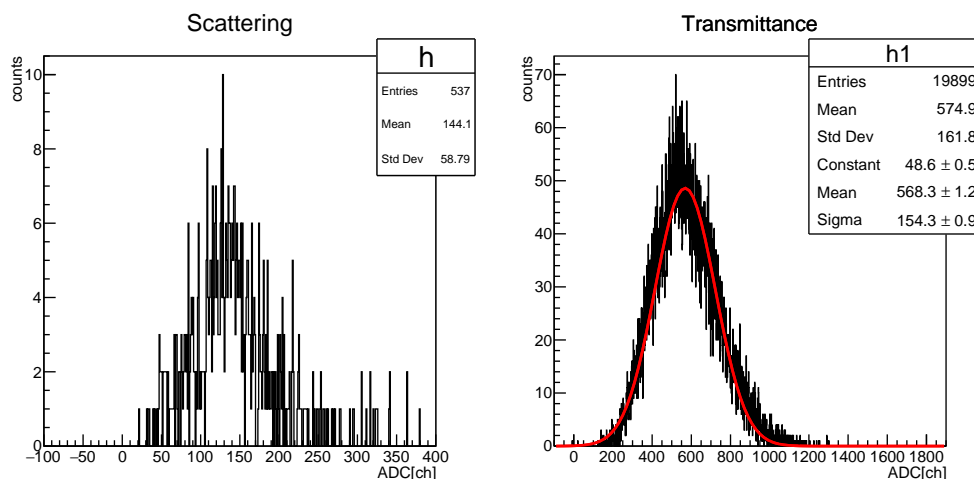


図 5.29: 光の散乱の PMT による測定結果。左図は Waveform Digitizer で得られた散乱用 PMT の ADC 値、右図は、Waveform Digitizer で得られた透過用 PMT の ADC 値。右図の赤線はガウス関数でフィットした結果であり、フィットで得られた中央値を ADC 値とする。

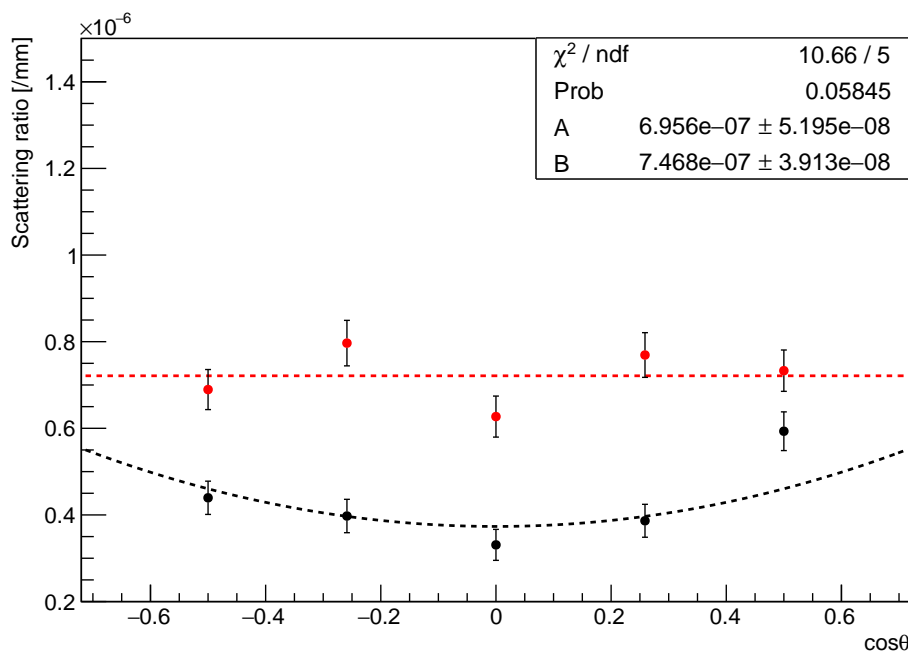


図 5.30: 光の散乱の偏光成分。赤点は $R_{\perp}(\theta)$ の測定結果、黒点は $R_{\parallel}(\theta)$ の測定結果、赤点線は $R_{\perp}(\theta)$ 、黒点線は $R_{\parallel}(\theta)$ の同時フィットの結果を表している。入射光波長は $\lambda = 437\text{nm}$ である。

偏光成分

散乱用 PMT の前に設置した 2 枚のスリットの間、偏光フィルター (SPF-50C-32 シグマ光機製) を設置し、偏光フィルターを回転させることで垂直偏光と平行偏光した散乱光強度を測定した。測定結果をもとに各角度での散乱確率を式 (5.45) を用いて計算し、式 (5.50) でフィットすることで偏光成分の角度依存性が求められる。 $R_{\perp}(\theta)$ と $R_{\parallel}(\theta)$ を同時フィットした結果を、図 5.30 に示す。この時の入射光波長は $\lambda = 437 \text{ nm}$ である。

同時フィットした結果を表 5.12 に記す。

表 5.12: 偏光成分の同時フィット結果

フィットパラメーター	値
A	$(6.956 \pm 0.520) \times 10^{-7}$
B	$(7.468 \pm 0.391) \times 10^{-7}$

これより、偏光解消度は式 (5.17) を用いて、以下のように計算することができる。

$$\delta = \frac{B}{A+B} = 0.52 \pm 0.02 \tag{5.51}$$

先行実験 [31] では $\delta = 0.31 \pm 0.01$ であり、測定結果とは異なる。先行実験と本研究の違いとして、使用した液体シンチレータのサンプルが挙げられる。先行実験では LAB 単体で、本研究では LAB

に溶質として PPO と Bis-MSB を加えたサンプルで測定を行なった。この違いを確かめるためには、本研究の測定系で LAB を用いて測定する必要がある。このため、この測定結果からは散乱光の偏光成分だけを確認した。

角度依存性

測定結果をもとに各角度での散乱確率を式 (5.45) を用いて計算し、式 (5.46) でフィットした結果を図 5.31、5.32、5.33 に示す。このとき、各データ点の誤差は、測定における観測光子数の統計誤差と、透過用 PMT における ADC 値のフィットによる誤差を考慮している。

大まかではあるが角度依存性があることを確認することができた。ただし、データ点のばらつきがあること、偏光特性の測定結果と偏光解消度が異なることが挙げられるため、より精度の高い測定が必要になる。これらの問題の原因として考えられるのは、ミー散乱である。液体シンチレータ中の不純物によって、ミー散乱が生じると考えられる。本研究では、液体シンチレータを純化する際に 50 nm のフィルターを使用した。このため、液体シンチレータ中の不純物の大きさは 50 nm 未満になる。しかし、本研究での入射光波長は 400~500 nm であるため、不純物の大きさが入射光波長の 1/10 程度になることから、ミー散乱が起こることは十分に考えられる。このミー散乱を防ぐためにはより細かいフィルターを使用して純化し、液体シンチレータ中の不純物を取り除く必要がある。

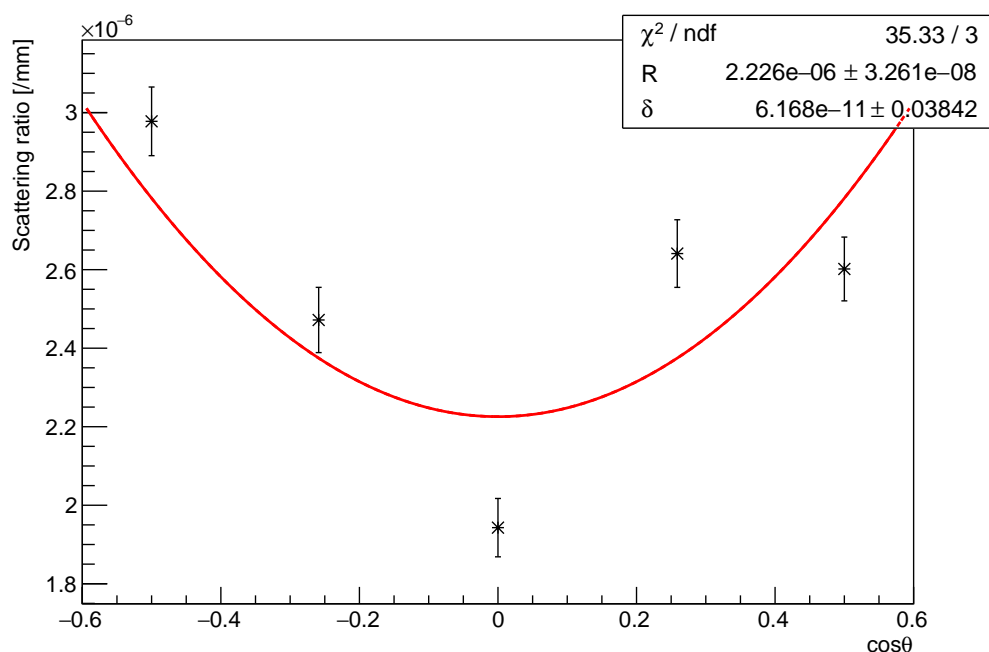


図 5.31: 光の散乱確率の角度依存性 波長 425 nm

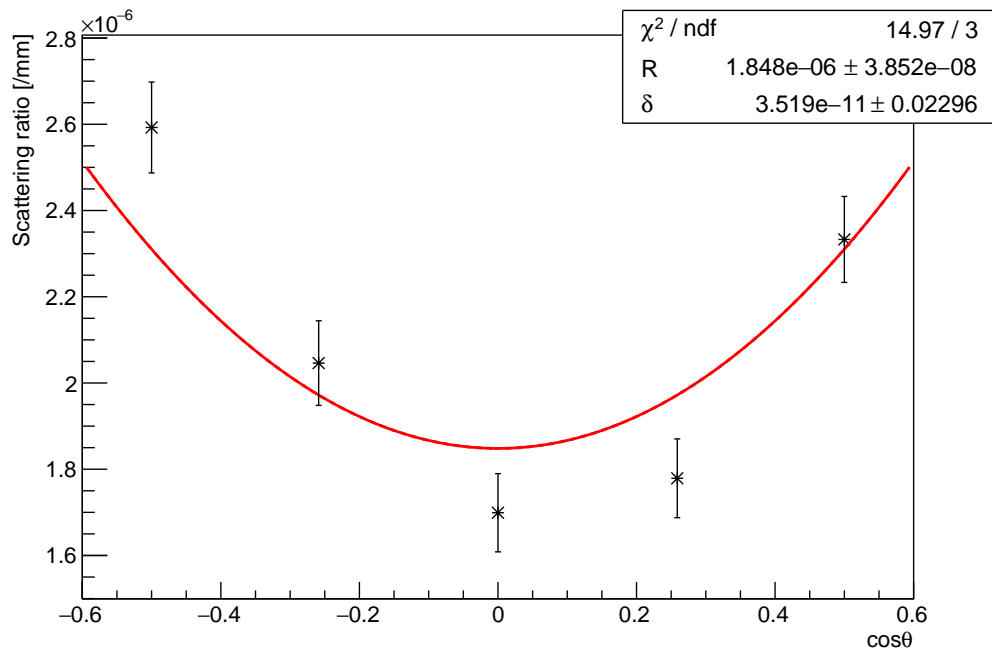


図 5.32: 光の散乱確率の角度依存性 波長 437 nm

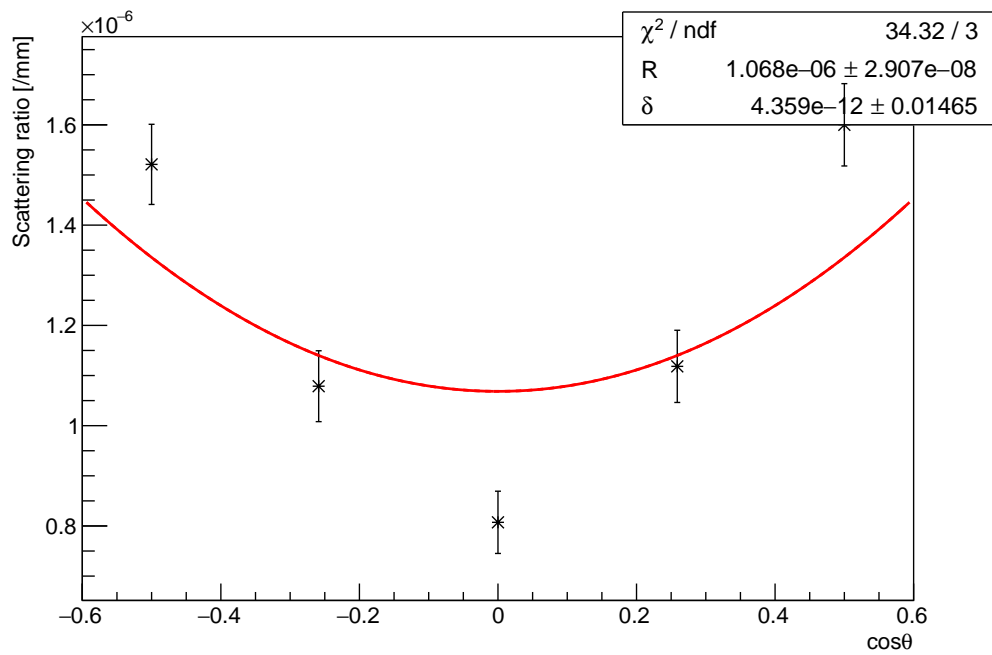


図 5.33: 光の散乱確率の角度依存性 波長 470 nm

波長依存性

角度依存性を求めたフィット結果を使用して、式 (5.48) を用いて散乱長を計算する。散乱長の結果を表 5.13 に示す。誤差は、式 (5.46) でのフィットの誤差と測定機器の較正の際の誤差を表している。式 (5.24) より、散乱長は入射光波長 λ^4 に比例することから、フィットした結果を図 5.34 に示す。角度依存性を求めたフィットのエラーが大きいため、各波長における散乱長のエラーも大きくなってしまったが、誤差の範囲内で一致している。

表 5.13: 各波長における散乱長の結果

入射光波長 [nm]	全散乱長 [m]
425	26.8 ± 6.5
437	32.3 ± 7.7
470	55.9 ± 15.7

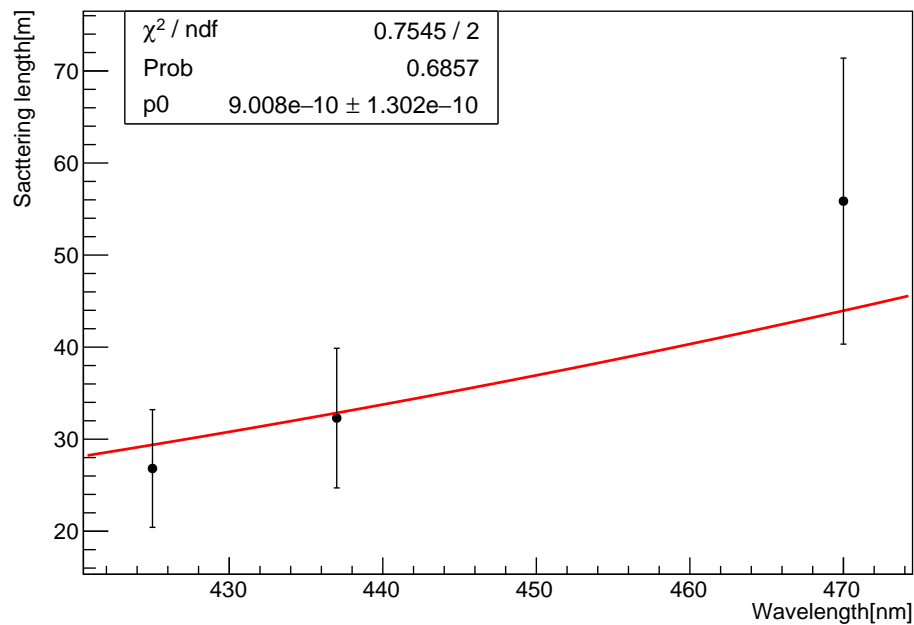


図 5.34: 散乱長の波長依存性

第6章

結論と今後の課題

6.1 結論

本論文では、先行研究では報告されていなかった PEN フィルムの LAB-LS 耐性、並びに発光性バルーンを使用する際に用いる、Bis-MSB 含有の液体シンチレータの評価について報告した。

PEN フィルムの LAB-LS 耐性は、LAB-LS に PEN フィルムを浸した状態で加速劣化試験を行った。実質 2 年間経過したサンプルを用いて透過率測定を行い、PEN フィルムの有無のサンプルの比較することで PEN フィルムの溶け出しの有無を確認した。透過率の測定誤差 0.3% の範囲内で一致していることから、PEN フィルムは KamLAND-LS 耐性と LAB-LS 耐性を持つことが分かった。

発光性バルーンを使用する際には PEN フィルムの透過率に問題があるため、将来実験 KamLAND2-Zen 実験で使用する液体シンチレータは、波長変換剤 Bis-MSB を含有しなければいけない。将来実験をフルシミュレーションするには、液体シンチレータ中の光の伝搬を再現することが必要であるため、Bis-MSB 含有の液体シンチレータの光学的性質の評価を行った。

発光量

KamLAND-Zen 実験で使用している KamLAND-LS と将来実験で使用する LAB-LS について、Bis-MSB の有無を加えた 4 サンプルで測定した。Bis-MSB を溶解したサンプルの方が発光量が多く、Bis-MSB が発光量に悪影響を与えないことを確認した。

透過率

発光量測定と同様の 4 サンプルを用いて測定した。Bis-MSB の吸収波長 (~400 nm) よりも長い波長領域での透過率はほぼ 100% であり、Bis-MSB が 9 cm 透過率に悪影響を与えないことを確認した。

光の散乱

光の散乱の測定系を確立した。ロータリステージを用いることで、散乱用 PMT ならびにスリットの範囲の角度を変更することができる。また、光の散乱測定に使用した窒素/色素レーザーは、色素を変えることで異なる波長の光を射出することができる。本研究では、液体シンチレータとして LAB-LS+Bis-MSB、入射光の波長として $\lambda = 425, 437, 470$ nm を用いて、光の散乱測定を

行なった。理論で予測されている $(1 + \cos^2\theta)$ の角度依存性を、各波長において大まかではあるが確認することができた。また、この角度依存性から求められる散乱長は、理論上 λ^4 の波長依存性を持っており、実験で得られた散乱長が λ^4 を満たすことを確認した。表 6.1 に本研究で得られた散乱長の結果を記す。LAB-LS+Bis-MSB の屈折率の測定結果と LAB の性能測定 [30,31] の結果から求めた理論値 $l_S = 28.3 \pm 2.1 \text{ m}$ ($\lambda = 430 \text{ nm}$)、先行実験 [28] で得られた LAB の散乱長 $l_S = 27.0 \pm 2.3 \text{ m}$ ($\lambda = 430 \text{ nm}$) と比較して、矛盾のない結果が得られた。このことから、LAB-LS+Bis-MSB における光の散乱は、レイリー散乱で説明することができる。

表 6.1: 本研究で得られた散乱長の結果

入射光波長 [nm]	全散乱長 [m]
425	26.8 ± 6.5
437	32.3 ± 7.7
470	55.9 ± 15.7

6.2 今後の展望

透過率測定

LAB-LS+Bis-MSB の 9 cm 透過率測定は行い、Bis-MSB が悪影響を与えないことを確認した。しかし、KamLAND 検出器は半径 6.5 m であり、9 cm 透過率から 6.5 m 透過率へと変換させるときに大きな不定性が生じる。この不定性を減らすためには、 $O(1 \text{ m})$ での透過率測定が必要になる。

光の散乱

各波長における角度依存性を確認したが、データ点にばらつきがみえること、偏光特性の測定結果と偏光解消度が異なることが見られる。この要因として、液体シンチレータ中の不純物から生じるミー散乱が挙げられる。入射波長に比べて散乱体の粒子半径が十分小さい場合、ミー散乱ではなくレイリー散乱が主な散乱となる。このため、光の散乱測定で使用する液体シンチレータを、より細かいフィルターを使用して純化することで、液体シンチレータ中の不純物を取り除くことが必要である。データ点のばらつきがなくなることで、フィットによるエラーが減少し散乱長の誤差が小さくなることから、精度の高い値を得ることができる。

吸収・再発光

液体シンチレータ中の光の伝搬を再現する際に、光の吸収・再発光は重要なパラメーターの一つである。吸収・再発光は、再発光までの寿命を測定することで、効率を求めることができる。このため、より時間分解能の良い Waveform digitizer や TDC を用いて、吸収・再発光の測定をすることが必要である。

謝辞

本論文の執筆および約2年間の研究活動にあたり、大変多くの方々にお世話になりました。この場を借りて感謝の意を表したいと思います。

本論文の主査でありセンター長である井上邦雄先生には、大変恵まれた環境で研究できる機会を与えて頂きました。ハードウェアミーティングや修士論文の発表練習の際に、研究や発表に関する様々なご指摘やご助言を頂きました。ご指摘によって私の理解が不十分である点が判明したり、質問に答えられなかった時にご助言をいただいたことにより、本研究への理解が深まりました。ありがとうございました。指導教官である清水格先生には、本研究の方針から本論文や発表資料の添削までご指導して頂きました。お忙しい中質問に答えていただいたり、議論していただいたりした時間はとても私にとって有意義な時間でした。また自分の不甲斐なさのために、休日にも関わらず修士論文の添削をして頂き、大変申し訳ありませんでした。最後までご指導して頂き、ありがとうございました。この他にも、ニュートリノセンターの先生方には多くの助言をいただいたこと、技術職員の皆様には実験装置の改良を手伝っていただいたことで、本論文を書き上げることができました。本当にありがとうございました。

先輩方は皆優秀な方で、どんな質問をしても丁寧に答えてくださるなど、多くのご指導を頂きました。生意気な後輩でしたが、優しく接して頂きありがとうございました。同期の皆さんは優秀な方ばかりで、追いつけるようにと努力したおかげで研究が進みました。我が強い人が揃いましたが、とても楽しい研究室生活でした。博士課程後期でも、“仲良く”頑張ってください。後輩の皆さんには、飲み会の席で仲良くして頂きありがとうございました。

最後になりますが、ニュートリノ科学研究センターの皆様など多くの方々に大変お世話になりました。改めて感謝の意を表します。

参考文献

- [1] C Cowan, et al. Detection of the Free Neutrino: a Confirmation. *Science*, Vol. 124, No. 3212, pp. 103–104, 1956.
- [2] G. Danby, et al. Observation of High-Energy Neutrino Reactions and the Existence of Two Kinds of Neutrinos. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 9, pp. 36–44, Jul 1962.
- [3] K. Kodama, et al. Observation of tau neutrino interactions. *Physics Letters B*, Vol. 504, No. 3, pp. 218 – 224, 2001.
- [4] Raymond Davis. A review of the homestake solar neutrino experiment. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, Vol. 32, pp. 13 – 32, 1994.
- [5] K. S. Hirata, et al. Observation of a small atmospheric muon-neutrino / electron-neutrino ratio in Kamiokande. *Phys. Lett.*, Vol. B280, pp. 146–152, 1992.
- [6] A. S. Barabash. Average and recommended half-life values for two-neutrino double beta decay: upgrade-2019, 2019.
- [7] K. Zuber. *Neutrino Physics, Second Edition*. Series in High Energy Physics, Cosmology and Gravitation. Taylor & Francis, 2011.
- [8] Avignone, et al. Double beta decay, Majorana neutrinos, and neutrino mass. *Reviews of Modern Physics*, Vol. 80, No. 2, p. 481 - 516, Apr 2008.
- [9] CUORE Collaboration, et al. Improved Limit on Neutrinoless Double-Beta Decay in ^{130}Te with CUORE, 2019.
- [10] M. Agostini, et al. Probing Majorana neutrinos with double- β decay. *Science*, Vol. 365, No. 6460, p. 1445 - 1448, Sep 2019.
- [11] G. Anton, et al. Search for Neutrinoless Double- β Decay with the Complete EXO-200 dataset. *Physical Review Letters*, Vol. 123, No. 16, Oct 2019.
- [12] HAMAMATSU. 光電子増倍管その基礎と応用.
- [13] A. Gando, et al. Search for Majorana Neutrinos Near the Inverted Mass Hierarchy Region with KamLAND-Zen. *Physical Review Letters*, Vol. 117, No. 8, Aug 2016.
- [14] Y. Gando. First result of KamLAND-Zen 800. In *16th International Conference on Topics in Astroparticle and Underground Physics*, 2019.
- [15] 上澤康平. KamLAND2-Zen 実験で用いる新液体シンチレータの活性炭による純化. 修士論文, 東北大学, 2018.
- [16] 朝倉康太. KamLAND-Zen 次期計画へ向けた新型 PMT の性能研究. 修士論文, 東北大学, 2015.
- [17] 太田直輝. KamLAND2-Zen 実験のための集光ミラーを用いた高光収率検出器の開発. 修士論文, 東北大学, 2019.

- [18] 小原脩平. KamLAND-Zen 実験における ^{214}Bi バックグラウンド除去のための発光性バルーンフィルムの開発研究. 修士論文, 東北大学, 2015.
- [19] 中田貴大. カムランド禅用ミニバルーンの開発研究. 修士論文, 東北大学, 2012.
- [20] Li ping He, et al. An optimal solvent of liquid scintillator for fast-neutron imaging applications. *Journal of Luminescence*, Vol. 148, pp. 256 – 261, 2014.
- [21] 加藤領. ニュートリノレス 2 重ベータ崩壊観測のための液体シンチレータ開発. 修士論文, 東北大学, 2012.
- [22] T. Adam, et al. JUNO Conceptual Design Report, 2015.
- [23] 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. 修士論文, 東北大学, 2012.
- [24] 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.
- [25] 大浦智也. KamLAND2-Zen に向けた新液体シンチレータの純化. 修士論文, 東北大学, 2016.
- [26] Jan W. Gooch, editor. *Cauchy's dispersion formula*, pp. 167–167. Springer New York, New York, NY, 2007.
- [27] D.K. Lynch, et al. *Color and Light in Nature*. Cambridge University Press, 2001.
- [28] Xiang Zhou, et al. Rayleigh scattering of linear alkylbenzene in large liquid scintillator detectors. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 86, No. 7, p. 073310, Jul 2015.
- [29] M. Wurm, et al. Optical scattering lengths in large liquid-scintillator neutrino detectors. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 81, No. 5, p. 053301, May 2010.
- [30] X Zhou, et al. Densities, isobaric thermal expansion coefficients and isothermal compressibilities of linear alkylbenzene. *Physica Scripta*, Vol. 90, No. 5, p. 055701, Apr 2015.
- [31] Qian Liu, et al. Rayleigh scattering and depolarization ratio in linear alkylbenzene. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 795, p. 284 - 287, Sep 2015.
- [32] A. Akbarozari, et al. Analysis of Scattering Light from In-flight Particles in Suspension Plasma Spray for Size Measurement. *Journal of Thermal Spray Technology*, Vol. 28, No. 4, pp. 678–689, Apr 2019.
- [33] Inc. Laser Photonics. *LN203/LN203C NITROGEN/OPTIONAL DYE LASER Operator's Manual*.
- [34] HAMAMATSU. *PHOTOMULTIPLIER TUBE R329-02*.