

修士論文

KamLAND2-Zen 実験で使用するキセノン含有液体シンチレータの特性研究および組成決定

Studies on properties of xenon-containing liquid scintillator and composition determination for KamLAND2-Zen experiment

東北大学理学研究科
物理学専攻

渡部 一步

令和5年

概要

宇宙物質優勢の謎やニュートリノの軽い質量の起源に迫るために、ニュートリノのマヨラナ性の検証が素粒子・原子核物理学において重要課題の一つになっている。その検証の現状唯一の実験手段として、ニュートリノを伴わない二重ベータ ($0\nu\beta\beta$) 崩壊探索実験が挙げられる。KamLAND-Zen 実験では LS 中に ^{136}Xe を溶かし込み、その崩壊を利用して $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索を行なっている。現在は KamLAND-Zen800 実験を進行させ、世界最高感度で探索を行なっているが、未だ $0\nu\beta\beta$ 崩壊は発見されていない。そこで、更なる背景事象の低減とエネルギー分解能の向上を目標とする、KamLAND2-Zen 実験が計画されている。KamLAND2-Zen 実験では、検出器の様々な改良がなされる予定だが、そこではバックグラウンド低減のための発光性 PEN フィルム導入、検出光量増加のための集光ミラー、高量子効率 PMT, 大発光量液体シンチレータ (LS) の導入、Xe の増加などが挙げられる。

新液体シンチレータについては現在 LAB をベースとして LS が候補として上がっているが、インナーバルーンに導入する Xe 含有状態での発光量、透過率、発光時定数などが測定されていない。本研究では LAB をベースとした LS の Xe 含有状態での発光量を初めて測定した。また、Xe 含有状態での透過率、発光時定数は LS の種類に関わらず初めて測定を行った。特に透過率測定では、新たな装置を使用することで系統誤差を、最大 10 分の 1 程度まで削減することに成功した。

本研究では、これら新たに測定した光学特性データを用いて、Xe を導入することによる発光量減少などの変化への対処や影響の考察を行った。現段階では Xe による発光量減少は第一発光溶質である PPO の増加 (4.0 -4.5 g/L 程度) が有効であり、KamLAND-LS の最大 1.33 倍まで発光量が増加すること結論づけた。また、測定したデータや前述の改良点をもとにシミュレーションを行うことでインナーバルーン内のみならず波長変換剤である Bis-MSB を導入することで $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索に必要なインナーバルーン内での発光の検出光量を最大化できることがわかった。現段階では、N10 を使用した LS で従来の 4.82 倍、LAB を使用した LS では従来の 5.24 倍程度まで検出光量が増加すると結論づけた。

目次

第 1 章	ニュートリノ物理	1
1.1	ニュートリノ	2
1.2	ニュートリノ振動実験	2
1.2.1	太陽ニュートリノ問題	2
1.2.2	大気ニュートリノ異常	4
1.3	ニュートリノ振動	4
1.3.1	真空中における振動	5
1.3.2	物質効果 (MSW 効果)	8
1.3.3	ニュートリノの質量階層性	12
1.4	ニュートリノのマヨラナ性	13
1.4.1	ディラック質量	13
1.4.2	マヨラナ質量	14
1.4.3	シーソー機構	15
1.5	ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$)	16
第 2 章	KamLAND2-Zen 実験	19
2.1	KamLAND 検出器	19
2.1.1	外部検出機 (Outer Detector)	20
2.1.2	内部検出機 (Inner Detector)	20
2.2	KamLAND-Zen 実験	23
	Xe 含有液体シンチレータ	24
	インナーバルーン	24
2.2.1	KamLAND-Zen400 実験	25
2.2.2	KamLAND-Zen800 実験	25
2.3	KamLAND-Zen 実験の背景事象	26
2.3.1	^{136}Xe の $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象	26
2.3.2	^{10}C の崩壊事象	27
2.3.3	Xe の崩壊事象	27
2.3.4	^{214}Bi の崩壊事象	27

2.3.5	^{212}Bi と ^{212}Po のパイルアップ事象	30
2.4	KamLAND2-Zen 実験 (将来計画)	30
2.4.1	バックグラウンドの低減	31
2.4.2	集光量の増加	31
第 3 章	液体シンチレータの諸特性	35
3.1	蛍光スペクトル測定	35
3.1.1	研究背景	35
3.1.2	測定方法	35
3.1.3	結果測定	36
3.2	屈折率測定	39
3.2.1	測定原理	39
3.2.2	測定方法	39
3.2.3	測定結果	40
3.3	^{214}Bi – ^{214}Po 遅延同時計測による α 線発光量測定	41
3.3.1	測定方法	41
3.3.2	測定セットアップ	42
3.3.3	α 線発光量解析方法	42
3.3.4	α 線発光量解析	44
第 4 章	Xe 含有液体シンチレータの発光量評価	50
4.1	研究方法	50
4.2	実験方法	50
4.2.1	発光量測定について	50
4.2.2	実験手順	51
4.2.3	Xe ガス溶解について	52
4.3	Xe 含有液体シンチレータの発光量測定	54
4.3.1	試料概要	54
4.3.2	結果と考察	55
4.4	発光量測定におけるブラックシートの導入	56
4.4.1	背景	57
4.4.2	実験方法	57
4.4.3	結果	58
4.5	Xe 含有液体シンチレータの PPO・Bis-MSB 量変化における発光量の変化	59
4.5.1	試料概要	59
4.5.2	実験方法	59
4.5.3	LAB based-LS における PPO 量調整	59
4.5.4	N10-LS+Bis-MSB における PPO 量調整	60

4.5.5	LAB based-LS における Bis-MSB 量調整	61
4.5.6	Bis-MSB・PPO 量調整による費用の考慮	61
4.6	考察とまとめ	62
第 5 章	Xe 含有液体シンチレータの発光時定数	63
5.1	研究方法	63
5.1.1	解析について	64
5.2	液体シンチレータの発光時定数測定	66
5.2.1	測定試料	66
5.2.2	測定方法	66
5.2.3	結果	66
5.3	Xe を導入した際の発光時定数測定	67
5.3.1	結果と考察	68
第 6 章	高精度分光光度計を用いた LS の透過率測定	75
6.1	研究背景	75
6.2	測定原理	75
6.2.1	ベースライン	75
6.2.2	UV-2600 の測定原理	76
6.3	測定器具	76
6.4	測定における条件	78
6.4.1	測定環境条件	78
6.4.2	測定中の条件	79
6.5	誤差評価	79
6.6	減衰長測定	81
6.6.1	原理	81
6.6.2	測定	82
6.6.3	先行研究との比較	85
6.7	考察	85
第 7 章	KLG4 を用いたシュミレーション	91
7.1	シュミレーション構築・条件設定	91
7.1.1	Geant4	91
7.1.2	KLG4	91
7.1.3	ジオメトリ	91
7.1.4	液体シンチレータ	91
7.1.5	パラメータ	92
7.1.6	シュミレーション条件	95
7.2	シュミレーションによる減衰長測定の評価	96

7.3	LS への Bis-MSB の追加	98
7.3.1	ミニバルーン内での発光	98
7.3.2	ミニバルーン外での発光	99
7.3.3	結果と考察	99
7.4	PEN フィルムの導入	100
7.4.1	ミニバルーン内での発光	101
7.4.2	ミニバルーン外での発光	101
7.4.3	観測波長の確認	101
7.4.4	PEN フィルムの厚さによると検出光量評価	102
7.4.5	結果と考察	103
7.5	LAB の導入による発光量の変化	104
7.5.1	結果と考察	105
7.6	高量子効率 PMT と集光ミラーの導入による $0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の分解能評価	106
7.6.1	高量子効率 PMT と集光ミラーの導入	106
7.6.2	$0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の分解能評価	107
7.7	結果と考察	108
第 8 章	結論と今後の課題	111
8.1	結論	111
8.2	今後の課題	111
付録 A		113
付録 B		116
付録 C		120
付録 D		122
謝辞		126

目次

1.1	標準模型における素粒子	2
1.2	太陽ニュートリノフラックス	3
1.3	スーパーカミオカンデ実験で観測された大気ニュートリノイベントの天頂角分布	5
1.4	CC 反応と NC 反応のファインマンダイアグラム	8
1.5	SNO が観測した太陽ニュートリノのフラックス	10
1.6	T2K が観測した電子ニュートリノの出現	11
1.7	KamLAND が観測した原子炉ニュートリノの振動	11
1.8	ニュートリノの質量階層構造	13
1.9	$2\nu 2\beta$ と $0\nu 2\beta$ のダイアグラム	17
1.10	$\beta\beta$ 崩壊のエネルギースペクトル	17
1.11	KamLAND-Zen800 で得られたマヨラナ有効質量への制限	18
2.1	KamLAND 検出器とその周辺の様子	19
2.2	KamLAND 検出器の概略図	20
2.3	17-inch PMT と 20-inch PMT の概略図	22
2.4	R3600-06MOD の概略図	23
2.5	KamLAND-Zen 実験における検出器模式図	24
2.6	KamLAND-Zen400 実験のエネルギースペクトル	26
2.7	KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル	26
2.8	KamLAND-Zen 実験で見られる Xe 原子核破砕バックグラウンドのエネルギー スペクトル	28
2.9	Xe 原子核破砕事象の候補イベントと宇宙線ミューオン事象との時間相関図	28
2.10	^{238}U 系列の核種崩壊図	29
2.11	ミニバルーンにおける ^{214}Bi バックグラウンドイメージ図	29
2.12	^{232}Th 核種崩壊図	30
2.13	パイルアップイベントの Visible Energy	31
2.14	ミニバルーン PEN における ^{214}Bi バックグラウンドの除去イメージ図	32
2.15	PEN の構造式	32
2.16	現在と新型の PMT の QE	33

2.17	Bis-MSB の構造式	33
2.18	PEN の透過率、LAB-LS における Bis-MSB 有無での発光スペクトルでの違い	34
3.1	現在の LS の蛍光スペクトルと PEN の透過率比較	36
3.2	蛍光スペクトル測定の概略図 1	36
3.3	蛍光スペクトル測定の概略図 2	37
3.4	蛍光スペクトルで使用する機器・器具	37
3.5	Bis-MSB の量による変化	38
3.6	先行研究との蛍光スペクトル比較	38
3.7	臨界角法の概念図と使用機器	39
3.8	LAB based-LS の 13C° における屈折率	40
3.9	N10-LS + Bis-MSB の 13C° における屈折率	41
3.10	^{222}Rn 崩壊系列	42
3.11	Rn バブリング装置概念図	42
3.12	α 線発光量測定概念図	43
3.13	^{137}Cs による発光量測定結果 (LAB based-LS)	43
3.14	^{60}Co による発光量測定結果 (LAB based-LS)	44
3.15	キャリブレーション結果 (LAB based-LS)	44
3.16	先発信号と後発信号のエネルギースペクトル	45
3.17	イベントカット後の先発信号と後発信号のエネルギースペクトル (LAB based-LS)	45
3.18	α 線の発光イベントの割合 (LAB based-LS)	46
3.19	^{137}Cs による発光量測定結果 (N10-LS+Bis-MSB)	46
3.20	^{60}Co による発光量測定結果 (N10-LS+Bis-MSB)	47
3.21	キャリブレーション結果 (N10-LS+Bis-MSB)	47
3.22	先発信号と後発信号のエネルギースペクトル (N10-LS+Bis-MSB)	48
3.23	α 線の発光イベントの割合 (N10-LS+Bis-MSB)	48
4.1	発光量測定の概念図	51
4.2	セパラブルフラスコ	52
4.3	EJ550 の透過率	52
4.4	Xe ガス導入セットアップ	53
4.5	MODEL8500 マスフローコントローラ/メータ	53
4.6	Xe 含有液体シンチレータの発光量変化	55
4.7	Xe 溶解に伴う発光量変化	56
4.8	以前の発光量測定セットアップ	57
4.9	ブラックシートの耐性チェック (透過率)	58
4.10	ブラックシートを導入したフラスコ	59
4.11	LAB based-LS の PPO 量調整による発光量	60

4.12	N10-LS+Bis-MSB の PPO 量調整による発光量	60
4.13	LAB based-LS の Bis-MSB 量調整による発光量	61
5.1	発光時定数測定の大略図	64
5.2	Slewing 効果	64
5.3	TQ 補正の例	65
5.4	タイムスペクトル (LAB based-LS w/o Xe)	67
5.5	タイムスペクトル (N10-LS+Bis-MSB w/o Xe)	68
5.6	タイムスペクトル (LAB based-LS w/ Xe)	69
5.7	タイムスペクトル (N10-LS+Bis-MSB w/ Xe)	70
5.8	タイムスペクトルの比較 (LAB based-LS)	71
5.9	タイムスペクトルの比較 (N10-LS+Bis-MSB)	72
5.10	発光時定数パラメータの PPO・Xe による変化	73
6.1	UV-2600 と MPC-2600A の測定原理	77
6.2	測定に使用したセル	77
6.3	使用したアクリルの透過率	78
6.4	アクリルの透過率測定セットアップ	78
6.5	xz ステージ (シグマ光機社製 TASB-254)	79
6.6	UV-2600 のベースライン安定性	80
6.7	UV-2600 における各サンプルの透過率の誤差	81
6.8	UV-2600 における各サンプルの透過率測定	83
6.9	UV-2600 における各サンプルの 22.5cm 透過率	84
6.10	UV-2600 における kamLAND-LS の減衰長	85
6.11	UV-2600 における N10-LS+Bis-MSB の減衰長	86
6.12	UV-2600 における N10-LS+Bis-MSB の減衰長	86
6.13	UV-2600 における LAB based-LS の減衰長	87
6.14	UV-2600 における LAB based-LS の減衰長	87
6.15	UV-2600 における各サンプルの減衰長の平均値	88
6.16	本研究と先行研究の減衰長比較 (w/o Xe)	89
6.17	UV-2600 におけるシクロヘキサンの減衰長と吸収係数	89
7.1	ジオメトリにおける LS の配置	92
7.2	PMT の量子効率	93
7.3	LS の発光スペクトル	94
7.4	KLG4 で使用されている KamLAND-LS の屈折率	95
7.5	PPO と PPO+Bis-MSB の再発光確率	96
7.6	使用した PEN の光学パラメータ	96
7.7	KamLAND-LS の減衰長	97

7.8	KamLAND-LS の減衰長を変えた時の検出光量	97
7.9	γ 線の発生点概念図	98
7.10	KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)	99
7.11	KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)	100
7.12	KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)	101
7.13	KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)	102
7.14	PMT で検出された光の波長分布 (中心での発光)	103
7.15	PEN フィルムの厚さによる検出光量の変化 (中心での発光)	104
7.16	LAB based-LS での検出光量 (中心での発光)	105
7.17	KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル	106
7.18	高量子効率 PMT と集光ミラーの導入した時の検出光量 (中心での発光)	107
7.19	エネルギー分解能 $6.4\%/\sqrt{E[MeV]}$ でのエネルギースペクトルの重なり	108
7.20	シミュレーションによって得られた分解能向上によるエネルギースペクトルの重なり	109
8.1	発光量測定 の概念図	114
8.2	FADC, DT5751 での波形取得	114
8.3	発光量解析図例	115
8.4	使用した PMT の GAIN	117
8.5	1p.e. ピークフィット	118
8.6	1 p.e. イベント付近の波形	118
8.7	マルチフォトンピークフィット	119
8.8	分光光度計による 9 cm 透過率測定 の概略図	120
8.9	LS に光学特性を追加していった時の変化	123
8.10	PEN フィルムを追加したときの検出光量変化	124
8.11	PEN フィルムの吸収再発光確率変化による検出光量の変化	125

表目次

1.1	測定から得られたニュートリノ振動パラメータ	12
2.1	KamLS の構成要素	21
2.2	バッファオイルの構成要素	21
2.3	内部検出器 17-inch PMT と 20-inch PMT の性能	22
2.4	OD 20-inch PMT の性能	23
2.5	Xe-LS の構成要素	25
2.6	先行研究段階での新 LS の構成要素	34
3.1	屈折率フィットのパラメータ	40
3.2	2つの放射線源による発光量測定 (LAB based-LS)	44
3.3	2つの放射線源による発光量測定 (N10-LS+Bis-MSB)	47
3.4	α 線による発光のクエンチングファクター	49
4.1	N10-LS の構成要素	54
4.2	N10-LS + Bis-MSB の構成要素	54
4.3	LAB based-LS の構成要素	55
4.4	Xe 含有液体シンチレータの発光量変化	56
4.5	ブラックシートによる発光量の変化	58
4.6	PPO と Bis-MSB の価格	62
4.7	PPO と Bis-MS を追加する際の費用	62
5.1	LAB based-LS タイムスペクトルパラメーター比較	69
5.2	N10-LS+Bis-MSB タイムスペクトルパラメーター比較	70
5.3	LAB based-LS の発光成分ごとの値	71
5.4	N10-LS+Bis-MSB の発光成分ごとの値	72
7.1	LAB based-LS タイムスペクトルパラメーター比較	94
7.2	KamLAND-LS の減衰長を変えた時の検出光量	97
7.3	KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)	99

7.4	KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)	100
7.5	KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)	101
7.6	KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)	102
7.7	KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)	103
7.8	LAB based-LS での検出光量 (中心での発光)	104
7.9	高量子効率 PMT と集光ミラーの導入した時の相対検出光量 (中心での発光) . . .	107
7.10	検出光量増加による分解能の変化	108
7.11	Zen800 + PEN + Bis-MSB(IB only) の LS 組成	110
7.12	LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB only) の LS 組成	110
8.1	LS に光学特性を追加していった時の変化	122
8.2	PEN フィルムを追加したときの検出光量変化	123
8.3	PEN フィルムを追加したときの検出光量変化	124

第 1 章

ニュートリノ物理

ニュートリノは物質を構成する最小単位である素粒子の一種である。まずは素粒子について、素粒子間の相互作用には、1 強い相互作用・2 弱い相互作用・3 電磁相互作用・4 重力相互作用の 4 つがある。この中の重力相互作用以外の相互作用に基づき素粒子の性質・反応などを記述する理論を標準理論 (標準模型や標準モデルともいう) と呼ぶ。この理論で、ほぼ全ての素粒子実験の結果を説明することが出来る。理論に基づくと、素粒子は物質を構成する 3 世代のフェルミオン、相互作用を媒介するボソンに分けることができる。フェルミオンは、全てのスピンの $\frac{1}{2}$ であり、さらに相互作用の種類によっ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、電荷は 0 で中性である。前述のとおり、フェルミオンは 3 世代ありニュートリノの場合電子ニュートリノ ν_e 、ミューニュートリノ ν_μ 、タウニュートリノ ν_τ と呼ばれる。図 1.1 は素粒子の分類である。また、ニュートリノは中性であるため、その他の粒子と非常に反応しづらく、質量も非常に小さいため観測が難しいとされている。

ニュートリノの発見の歴史は、1930 年まで遡る。スイスの物理学者パウリ (Wolfgang Ernst Pauli) によってニュートリノの存在が予言された。当時原子核の β 崩壊の反応式は、

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

と考えられていたが、この式で出てくる電子のエネルギーは核種で決まった値を取るはずであるのに対して、観測結果は連続的な値をとっていた。これを説明するために、エネルギー保存が成り立つ中性的な未知の粒子が生成されていると仮定して

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.2)$$

という反応を予言した。その後 20 年以上経過した 1956 年にライネス (Frederick Reines) とコーワン (Clyde L. Cowan) の原子炉ニュートリノを用いた実験で存在が確かめられた。この実験では、反電子ニュートリノが観測されている。また、ニュートリノの発見以降も様々な実験が行われ、ニュートリノのヘリシティは全て左巻き、反ニュートリノのヘリシティは全て右巻きであるとわかった。さらに、1968 年にはミューニュートリノ、2000 年にはタウニュートリノが観測されている。

素粒子の標準模型

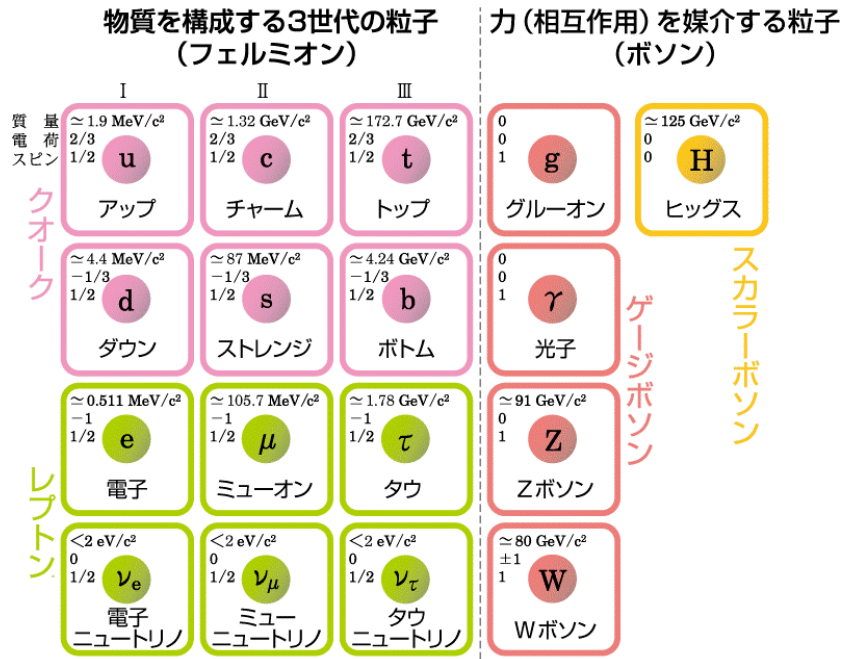


図 1.1 標準模型における素粒子 [1]

標準理論では、これら 3 世代のニュートリノの質量が 0 と仮定されていたが、1.2 節で述べるような太陽ニュートリノ問題、大気ニュートリノ異常の解決に際してニュートリノ振動という理論が確立した。この理論では、ニュートリノに質量があることが組み込まれている。

1.1 ニュートリノ

1.2 ニュートリノ振動実験

ニュートリノは、「波」の性質も持っている。それぞれのニュートリノが波として空間を伝播している。この時、空間を伝播しながらニュートリノの波が重ね合い、ニュートリノの種類が変わる現象が起きる。これが、ニュートリノ振動である。このニュートリノ振動は、ニュートリノの質量がゼロでない時に起こる現象である。

ニュートリノ振動について 1.3 節で詳しく述べる前に、ニュートリノ振動を考えるきっかけとなった太陽ニュートリノ問題、大気ニュートリノ異常について述べる。

1.2.1 太陽ニュートリノ問題

太陽内部では、pp 連鎖反応と CNO サイクルという核融合反応が起こっており、太陽の膨大なエネルギーが生成されている。2 つの反応は、連続する始状態と終状態を考慮すると、以下のような反応式で表される。

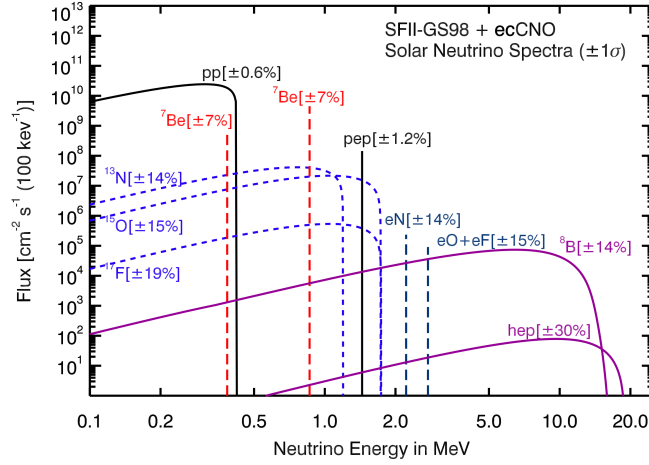
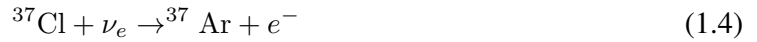


図 1.2 標準太陽模型による太陽ニュートリノフラックス [2]。標準太陽模型 [3] から計算。CNO サイクルの電子捕獲反応については [4] より計算。



ここでは、4つの陽子が融合して1つの ${}^4\text{He}$ 原子核が作られる。この時に、放出された核融合エネルギーの一部がニュートリノに与えられる。この反応で生成される電子ニュートリノが太陽ニュートリノと呼ばれる。式(1.3)と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推定できる。式(1.3)から推定される太陽ニュートリノフラックスは、 6.6×10^{10} 個/cm³/sとなる。図1.2に太陽ニュートリノフラックスを示す。

太陽ニュートリノの観測に関しては、1968年にHomestake実験[5]で測定が行われた。この実験では、テトラクロロエチレン C_2Cl_4 による以下の反応式(1.4)を用いて、 ${}^{37}\text{Ar}$ の量を計測することで太陽ニュートリノフラックスの測定を行なった。



この反応で生成した、 ${}^{37}\text{Ar}$ は、半減期35日で軌道電子捕獲を起こして ${}^{37}\text{Cl}$ に戻る。この時に放出されるオージェ電子を比例計数管で検出することでニュートリノ観測を実行した。

この実験は約30年続けられたが、理論の予測値に比べて30%ほどしか観測されなかった(理論値: $8.46_{-0.88}^{+0.87}$ SNU, 観測値: 2.56 ± 0.16 SNU, SNU(Solar Neutrino Unit): 10^{36} 個の標的原子核あたり毎秒1個のニュートリノ捕獲反応が起こることを相当するフラックス)。このズレが、「太陽ニュートリノ問題」と呼ばれる。

その後はGallex、GNO、SAGEなどの実験において ${}^{37}\text{Cl}$ の代わりに ${}^{71}\text{Ga}$ 原子核によるニュートリノ捕獲反応(式(1.5))



を用いて測定が行われた[6, 7]。この結果においても、理論値($127.9_{-0.82}^{+0.81}$ SNU)に比べて観測値

(Gallex/GNO 実験: $69.3 \pm 4.1 \pm 3.6$ SNU、SAGE 実験: $65.4_{-3.0}^{+3.1+2.8}$ SNU) となり、大きな食い違いが見られた。

また、カミオカンデ実験では約 3,000 トンの純水中の電子とニュートリノが純水中の電子と起こす弾性散乱 (式 (1.6))

$$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^- \quad (1.6)$$

で放出されるチェレンコフ光を光電子増倍管 (PMT: Photomultiplier Tube) で検出した。また、その後グレードアップ後の実験として約 50,000 トンの超純水を用いたスーパーカミオカンデ実験も行われた。これらの実験は、ニュートリノの到来方向までわかるセットアップで行われている [8, 9]。しかし、この実験においても、理論値よりも有意に少ない観測値が得られた。これら複数の実験から、予測値と観測値のずれは観測対象としていた ν_e が、地球での観測時には別のニュートリノに変化する、ニュートリノ振動によるものだと示唆された。この現象に関しては、1.3 で後述する。

1.2.2 大気ニュートリノ異常

大気ニュートリノとは、宇宙から地球に降り注ぐ宇宙線が大気中の窒素や酸素の原子核と相互作用を起こすことで生成されるニュートリノである。宇宙線と原子核が相互作用を起こすことで、パイ中間子が生成される。荷電パイ中間子が以下の 2 つの反応式 (1.7), (1.8) を通して電子ニュートリノとミューニュートリノが生成される。

$$\pi^\pm (K^\pm) \longrightarrow \mu^\pm + \nu_\mu (\bar{\nu}_\mu) \quad (1.7)$$

$$\mu^\pm \longrightarrow e^\pm + \nu_e (\bar{\nu}_e) + \bar{\nu}_\mu (\nu_\mu) \quad (1.8)$$

この反応は π^- でも同様に起こる。この反応において、 $\nu_\mu \cdot \bar{\nu}_\mu$ と $\nu_e \cdot \bar{\nu}_e$ との比が、理論的には 2:1 になるはずである。しかし、実際観測した結果は理論値の比よりも小さくなっていた。カミオカンデ、スーパーカミオカンデ実験によると、上空から降り注ぐニュートリノ数に比べ、地球内部を通過して飛来するニュートリノが少なくなっていた 1.2.2。これは、1998 年にスーパーカミオカンデ実験で大気ニュートリノ振動が観測されたことで解決に至った [10]。

1.3 ニュートリノ振動

1.2.1 節で述べた太陽ニュートリノ問題を解決するために牧二郎、中川昌美、坂田昌一によってニュートリノ振動は提唱された [12]。ニュートリノ振動はニュートリノのフレーバー固有状態と質量固有状態が異なることで、ある質量固有状態の重ね合わせであるフレーバーが時間経過とともに別のフレーバーに変化する現象である。実際にフレーバーの周期的な変化と太陽ニュートリノのフラックスの総量に変化しないことが実験的に確認されたことで、現在ではニュートリノの質量を 0 とする標準模型を拡張する必要性が生じている。ここでは真空中でのニュートリノ振動の公式を導出したのち、物質内でのニュートリノ振動について説明する。

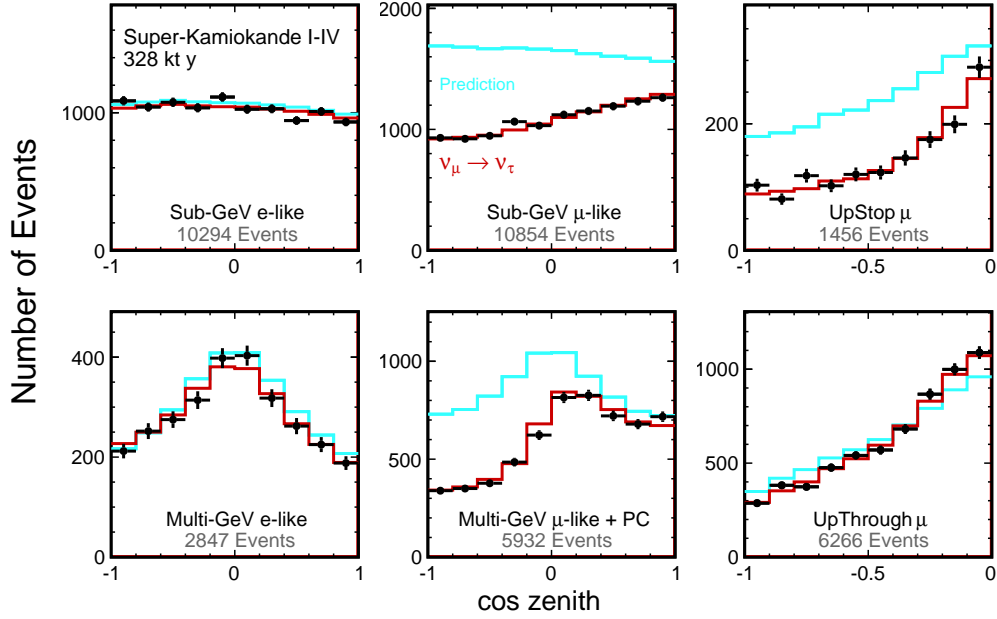


図 1.3 スーパーカミオカンデ実験で観測された大気ニュートリノイベントの天頂角分布 [11]。イベントが電子、ミュオンに由来すると判別されたものでそれぞれ分けて描かれている。Sub-GeV は観測されたイベントのエネルギーが 1.33 GeV より小さいものを、Multi-GeV は 1.33 GeV より大きいものを表す。PC はチェレンコフリングが検出器に一部含まれていたイベントを表す。また、右の 2 つの図はミュオンが上方向に通過し、検出器内で止まったものと検出器を通り過ぎたものを示している。

1.3.1 真空中における振動

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現され、

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i}^* |\nu_i\rangle \quad (1.9)$$

と表される。式 (1.9) で $U_{\alpha i}^*$ は MNS 混合行列と呼ばれ、以下のようなユニタリ行列に書き下せる。

$$\begin{aligned} U_{\alpha i} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & c_{23} & s_{23} \\ 0 & -s_{23} & c_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{13} & 0 & s_{13}e^{-i\delta} \\ 0 & 1 & 0 \\ -s_{13}e^{i\delta} & 0 & c_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{12} & s_{12} & 0 \\ -s_{12} & c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta} \\ -c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} - s_{12}c_{23} & -s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta} + c_{12}c_{23} & s_{23}c_{13} \\ -c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} + s_{12}s_{23} & -s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta} - c_{12}s_{23} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.10) \end{aligned}$$

ここで質量固有値 m_i および m_j をもつ状態の混合角を θ_{ij} として、 $s_{ij} \equiv \sin \theta_{ij}$ 、 $c_{ij} \equiv \cos \theta_{ij}$ である。また δ 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

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\nu_i\rangle = E_i |\nu_i\rangle \quad (1.11)$$

を解くことで以下のように得られる。

$$|\nu_i(\tau_i)\rangle = e^{-im_i\tau_i} |\nu_i(0)\rangle \quad (1.12)$$

ここで τ_i は静止系での ν_i の時間を表す。実験室系では式 (1.12) において

$$e^{-im_i\tau_i} = e^{-i(E_it - p_iL)} \quad (1.13)$$

と表せる。 t 、 L は実験室系での時間、位置を、 E_i 、 p_i は ν_i のエネルギー、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 $p_i \gg m_i$ 、 $E \simeq p_i$ として、

$$E_i = \sqrt{m_i^2 + p_i^2} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2p_i} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2E} \quad (1.14)$$

となる。自然単位系では $t \simeq L$ であるため

$$\begin{aligned} e^{-i(E_it - p_iL)} &\simeq e^{-i(E_i - p_i)L} \\ &\simeq e^{-i(m_i^2/2E)L} \end{aligned} \quad (1.15)$$

と表され、フレーバー固有状態の時間発展は以下のように記述できる。

$$\begin{aligned} |\nu_\alpha(L)\rangle &= \sum_i U_{\alpha i}^* e^{-i(m_i^2/2E)L} |\nu_i(0)\rangle \\ &= \sum_{i,\beta} U_{\alpha i}^* e^{-i(m_i^2/2E)L} U_{\beta i} |\nu_\beta\rangle \end{aligned} \quad (1.16)$$

よって、フレーバー α が距離 L を伝播したのち β に変化する確率は、

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= |\langle \nu_\beta | \nu_\alpha(L) \rangle|^2 \\ &= \left| \sum_i U_{\alpha i}^* U_{\beta i} e^{-i\frac{m_i^2}{2E}L} \right|^2 \\ &= \sum_{i,j} U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^* \exp\left(-i\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E}L\right) \end{aligned} \quad (1.17)$$

となる。ここで $\Delta m_{ij}^2 \equiv m_i^2 - m_j^2$ は質量の二乗差である。式 (1.17) の位相要素を

$$\begin{aligned} \exp\left(-i\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E}L\right) &= \cos\left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E}L\right) - i \sin\left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E}L\right) \\ &= 1 - 2\sin^2\left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{4E}L\right) - i \sin\left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E}L\right) \end{aligned} \quad (1.18)$$

と書き直すと、

$$P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) = \sum_{i,j} U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^* \left[1 - 2\sin^2\left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{4E}L\right) - i \sin\left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E}L\right) \right] \quad (1.19)$$

となる。式 (1.19) で $i = j$ のときは $\Delta m_{ij}^2 = 0$ となり、また $i \neq j$ のときは i, j の対称性から

$$\sum_{i,j \neq i} = 2 \sum_{i > j} \quad (1.20)$$

とすることができるので、ユニタリ行列の性質も用いると

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= \delta_{\alpha\beta} + \sum_{i,j \neq i} U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^* \left[-2 \sin^2 \left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{4E} L \right) - i \sin \left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E} L \right) \right] \\ &= \delta_{\alpha\beta} + 2 \sum_{i>j} U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^* \left[-2 \sin^2 \left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{4E} L \right) - i \sin \left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E} L \right) \right] \end{aligned} \quad (1.21)$$

となる。振動確率を実数にするため第二項を実部と虚部に分けると、振動確率は以下のようになる。

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= \delta_{\alpha\beta} - 4 \sum_{i>j} \operatorname{Re} (U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) \sin^2 \left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{4E} L \right) \\ &\quad + 2 \sum_{i>j} \operatorname{Im} (U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) \sin \left(\frac{\Delta m_{ij}^2}{2E} L \right) \end{aligned} \quad (1.22)$$

位相を無次元にするために $\hbar c \simeq 197 [\text{MeV} \cdot \text{fm}]$ を用いて

$$\frac{\Delta m_{ij}^2 [\text{eV}^2]}{4E [\text{MeV}]} L [\text{m}] = \frac{\Delta m_{ij}^2 [\text{eV}^2] L [\text{m}]}{4E [\text{MeV}] \hbar c [\text{MeV} \cdot \text{fm}]} = 1.27 \frac{\Delta m_{ij}^2 [\text{eV}^2]}{E [\text{MeV}]} L [\text{m}] \quad (1.23)$$

と表すと、3 フレーバーのニュートリノ振動の公式が以下のように導かれる。

$$\begin{aligned} P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= \delta_{\alpha\beta} - 4 \sum_{i>j} \operatorname{Re} (U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m_{ij}^2}{E} L \right) \\ &\quad \pm 2 \sum_{i>j} \operatorname{Im} (U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) \sin \left(2.54 \frac{\Delta m_{ij}^2}{E} L \right) \end{aligned} \quad (1.24)$$

ここで第三項の符号は + がニュートリノを、- が反ニュートリノを表す。

ニュートリノと反ニュートリノの振動確率の違いは

$$\Delta P = P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) - P(\bar{\nu}_\alpha \rightarrow \bar{\nu}_\beta) = -16 J_{\alpha\beta} \sin \Delta_{12} \sin \Delta_{23} \sin \Delta_{31} \quad (1.25)$$

である。ここで、

$$\Delta_{ij} \equiv 1.27 \frac{\Delta m_{ij}^2}{E} L \quad (1.26)$$

$$J_{\alpha\beta} \equiv \operatorname{Im} (U_{\alpha i}^* U_{\beta i} U_{\alpha j} U_{\beta j}^*) = \pm J_{\text{CP}} \quad (1.27)$$

$$J_{\text{CP}} \equiv s_{12} c_{12} s_{23} c_{23} s_{13} c_{13}^2 \sin \delta \quad (1.28)$$

であり、式 (1.27) の複号は + が e, μ, τ の循環、- が逆循環を表す。このニュートリノ振動確率の違いを利用することで、CP 対称性の破れを測定することができる。

1.3.2 物質効果 (MSW 効果)

ニュートリノが物質中を伝播すると、物質中との相互作用によりニュートリノ振動の振る舞いが真空中に比べて変化し、共鳴的な振動を起こす。この効果を提唱者の頭文字をとり MSW 効果 (Mikheyev-Smirnov-Wolfenstein effect) と呼ぶ [13, 14]。この効果はすべてのフレーバーのニュートリノは弱い相互作用のポテンシャルによって中性カレント (Neutral Current, NC) 反応を起こすのに加え、電子型のニュートリノだけが物質中の電子と荷電カレント (Charged Current, CC) 反応を起こすことが要因となっている (図 1.4)。

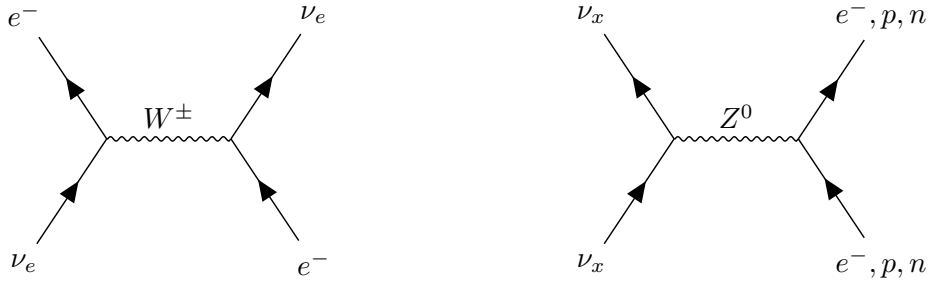


図 1.4 CC 反応 (左図) と NC 反応 (右図) のファインマンダイアグラム。添字 x はニュートリノのフレーバー (e, μ, τ) を表す。

CC 反応のポテンシャル V_{CC} と NC 反応のポテンシャル V_{NC} は、フェルミ結合定数 G_F 、物質中での電子密度 N_e と中性子密度 N_n を用いて

$$V_{CC} = \sqrt{2}G_F N_e, \quad V_{NC} = -\frac{\sqrt{2}}{2}G_F N_n \quad (1.29)$$

と表せる。簡単のため以下では 2 フレーバー間での振動を考える。フレーバー固有状態の時間発展は有効ハミルトニアン H_{eff} を用いて次のように記述できる。

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \nu_e(t) \\ \nu_\mu(t) \end{pmatrix} &= H_{\text{eff}} \begin{pmatrix} \nu_e(t) \\ \nu_\mu(t) \end{pmatrix} \\ &= \left[U \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix} U^\dagger + \begin{pmatrix} V_{CC} + V_{NC} & 0 \\ 0 & V_{NC} \end{pmatrix} \right] \begin{pmatrix} \nu_e(t) \\ \nu_\mu(t) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1.30)$$

ここで、

$$E_i = \sqrt{p_i^2 + m_i^2} \simeq p_i + \frac{m_i^2}{2p_i} \simeq E + \frac{m_i^2}{2E} \quad (1.31)$$

$$U = \begin{pmatrix} \cos \theta_{12} & \sin \theta_{12} \\ -\sin \theta_{12} & \cos \theta_{12} \end{pmatrix} \quad (1.32)$$

を用いると、有効ハミルトニアンは

$$H_{\text{eff}} = \left(E + \frac{m_1^2 + m_2^2}{4E} + \frac{V_{CC}}{2} + V_{NC} \right) I + \begin{pmatrix} -\frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta_{12} + \frac{V_{CC}}{2} & \frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta_{12} \\ \frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta_{12} & \frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta_{12} - \frac{V_{CC}}{2} \end{pmatrix} \quad (1.33)$$

と書ける。ここで $\Delta m^2 \equiv m_2^2 - m_1^2$ である。式 (1.33) の第一項がフレーバーの混合に関与しないことから、中性カレント反応が物質効果に無関係であることがわかる。また、物質中での混合角 θ_M は

$$\tan 2\theta_M = \frac{\frac{\Delta m^2}{4E} \sin 2\theta_{12}}{\frac{\Delta m^2}{4E} \cos 2\theta_{12} - \frac{V_{CC}}{2}} = \frac{\sin 2\theta_{12}}{\cos 2\theta_{12} - \frac{2EV_{CC}}{\Delta m^2}} \quad (1.34)$$

で表すことができる。この混合角を用いて表現されるユニタリ行列

$$U_M = \begin{pmatrix} \cos \theta_M & \sin \theta_M \\ -\sin \theta_M & \cos \theta_M \end{pmatrix} \quad (1.35)$$

で式 (1.33) の第二項を対角化すると、

$$U_M^\dagger H_{\text{eff}} U_M = \frac{\Delta m^2}{4E} \begin{pmatrix} -\sqrt{\left(\cos 2\theta_{12} - \frac{2EV_{CC}}{\Delta m^2}\right)^2 + \sin^2 2\theta_{12}} & 0 \\ 0 & \sqrt{\left(\cos 2\theta_{12} - \frac{2EV_{CC}}{\Delta m^2}\right)^2 + \sin^2 2\theta_{12}} \end{pmatrix} \quad (1.36)$$

となり、以下のように物質中での質量二乗差 Δm_M^2 が得られる。

$$\Delta m_M^2 = \Delta m^2 \sqrt{\left(\cos 2\theta_{12} - \frac{2EV_{CC}}{\Delta m^2}\right)^2 + \sin^2 2\theta_{12}} \quad (1.37)$$

物質内でのニュートリノ混合が最大となるのは式 (1.34) の分母が0 となるとき、すなわち

$$N_e = \frac{\Delta m^2 \cos 2\theta}{2\sqrt{2}G_F E} \quad (1.38)$$

のときである。反ニュートリノの場合は N_e の符号が逆になる。そのため、ニュートリノと反ニュートリノで物質効果による振動確率が異なり、「偽の」CP 非対称性の効果が現れる。したがって、CP 非対称性の測定を行う場合はニュートリノ振動における物質効果の影響をよく理解することが不可欠である。

ニュートリノ振動の式は導かれ、その後の実験で徐々にニュートリノ振動が確認されてきた。2002 年の SNO 実験 [15, 16] では、 D_2O を用いて、

$$\nu_x + e^- \longrightarrow \nu_x + e^- (ES) \quad (1.39)$$

$$\nu_e + d \longrightarrow p + p + e^- - 1.442 \text{ MeV} (CC) \quad (1.40)$$

$$\nu_x + d \longrightarrow p + n + \nu_x - 2.224 \text{ MeV} (NC) \quad (1.41)$$

の3つの反応による測定を行なった ($x = e, \mu, \tau$)。この実験では、ニュートリノフラックス全体とそれに占める ν_e の成分の同時測定を行い、太陽ニュートリノフラックスを測定した (図 1.5)。フラックス総量は、標準太陽模型の予測と一致したが、 ν_e の総量が減少しており、 ν_e が別のフレーバーに変化していることが確認された。

また、加速器を用いた実験も行われている。T2K (Tokai to Kamioka) 実験は、茨城県東海村にある J-PARC からのニュートリノビームを岐阜県神岡鉱山内のスーパーカミオカンデで観測することで、ニュートリノ振動を観測する実験である。この実験では、ビーム由来 ν_μ の消失から ν_e

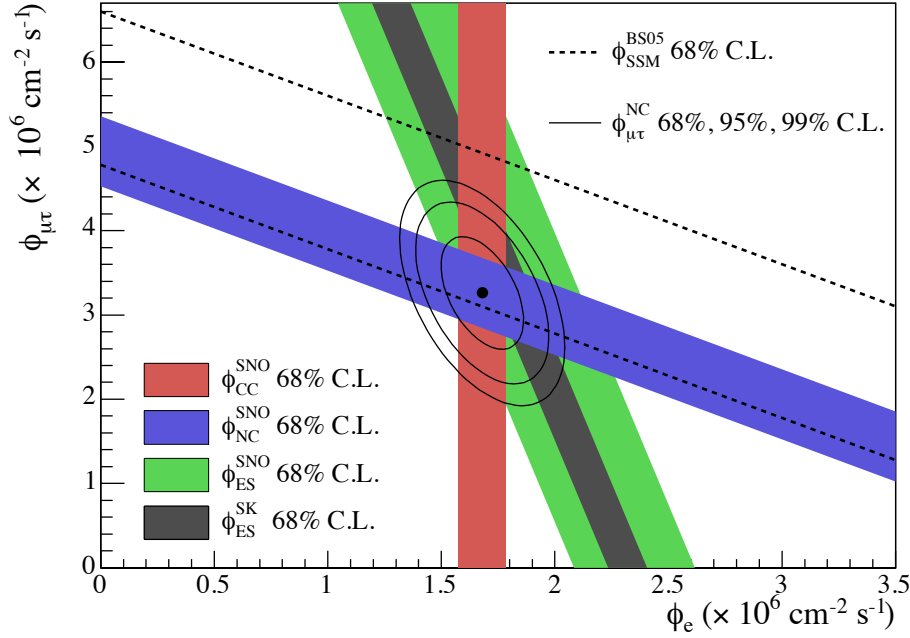


図 1.5 SNO が観測した太陽ニュートリノのフラックス [15]。黒点線は SSM [17] の理論予測を表す。また、黒い帯は Super-Kamiokande の弾性散乱の結果 [18] を表し、SNO の弾性散乱の結果とよく一致していることが確認できる。黒線で囲まれた領域及び黒点は SNO の CC 反応、NC 反応、弾性散乱の結果から求められた NC 反応の $\phi_{\mu\tau}$ のフィット結果を表す。このフィット結果が SSM の予測を再現していることがわかる。また、 $\phi_{\mu\tau}$ がゼロではないことからニュートリノ振動によってフレーバーが変化した証拠をとらえている。

の出現を捉え、 θ_{13} に対して、 $\sin^2 2\theta_{13} = 0.140^{+0.038}_{-0.032}$ (質量順階層, 図 1.6)、 $0.170^{+0.045}_{-0.037}$ (質量逆階層) という結果を得た [19]。

加えて、原子炉を用いた実験も行われている。KamLAND 実験において、検出器が設置されている岐阜県神岡を中心に半径約 180 km の距離にある原子炉からの反電子ニュートリノを観測した。

ここでは、 $\bar{\nu}_e$ の逆ベータ崩壊

$$\bar{\nu}_e + p \longrightarrow e^+ + n \quad (1.42)$$

を遅延同時計測で検出することで、背景事象の大幅な低減が可能になっている。図 1.7 に KamLAND のニュートリノ振動の観測結果を示す [20]。2 周期にわたるニュートリノ振動が観測されたため特に質量二乗差に対して高い感度を持ち、KamLAND で $\Delta m_{21}^2 = 7.54^{+0.092}_{-0.18}$ 、 $\tan^2 \theta_{12} = 0.481^{+0.092}_{-0.080}$ という結果を得ている。

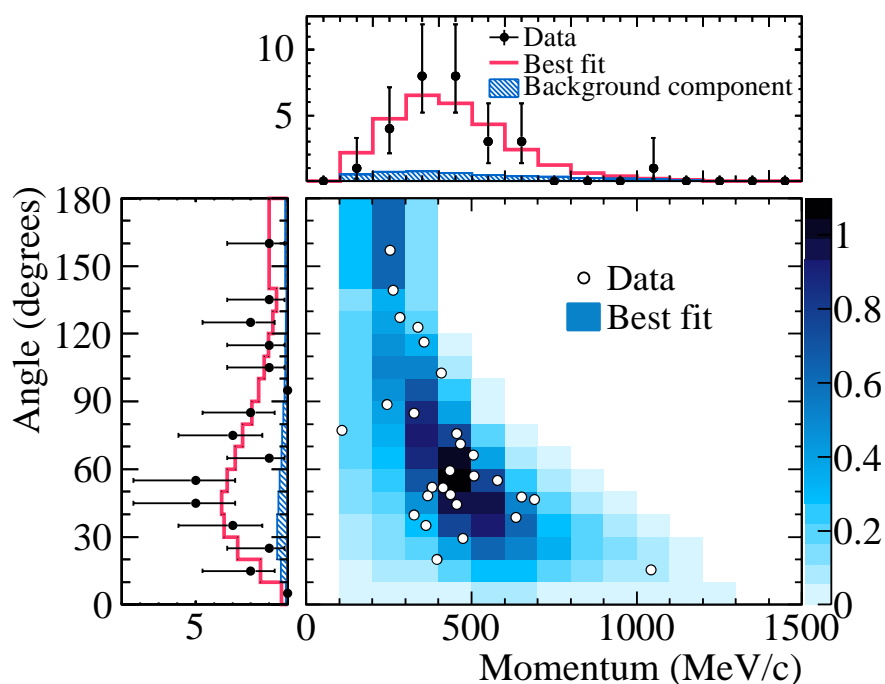


図 1.6 T2K が観測した電子ニュートリノの出現 [19]。横軸が ν_e と原子核との相互作用で生じた e^- の運動量を、縦軸が e^- の天頂角分布を表す。観測された ν_e 事象数は 28 であった。

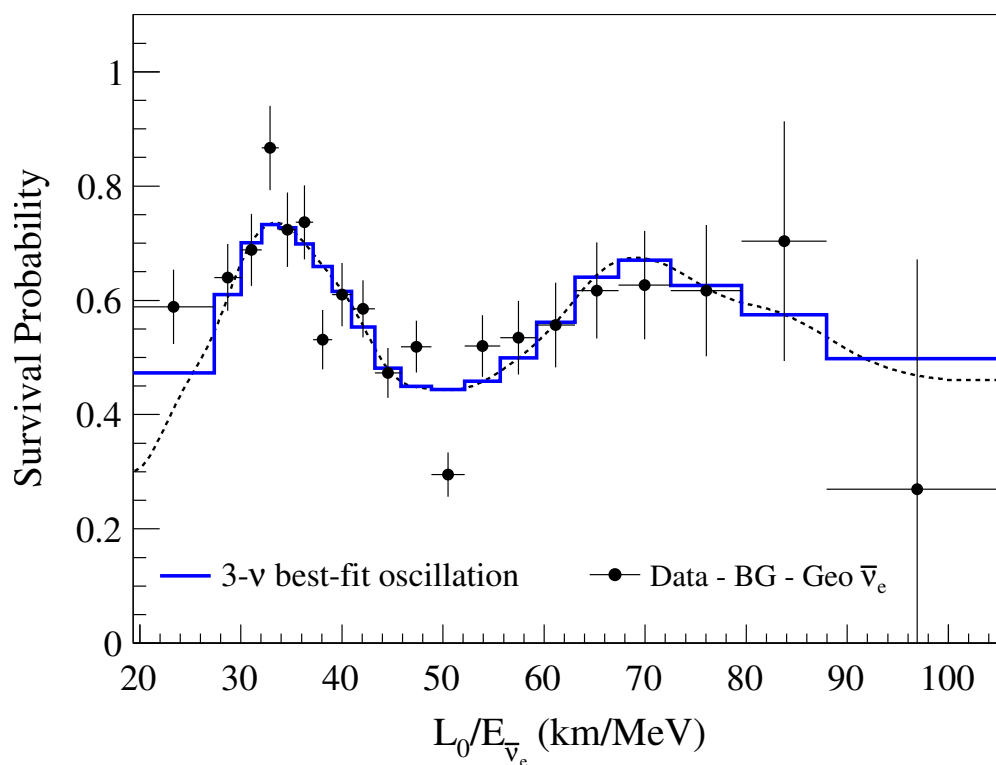


図 1.7 KamLAND が観測した原子炉ニュートリノの振動 [20]。 $\bar{\nu}_e$ の振動が 2 周期にわたって確認できる。ここで $L_0 = 180$ km は、原子炉からの $\bar{\nu}_e$ のフラックスで荷重平均をとった基線の長さである。

1.3.3 ニュートリノの質量階層性

上記の実験、またその他にも加えて行われた測定により、ニュートリノ振動のパラメータが決定されている (表 1.1)。

表 1.1 測定から得られたニュートリノ振動パラメータ [21]。

parameter	順階層		逆階層	
	best-fit $\pm 1\sigma$	3σ range	best-fit $\pm 1\sigma$	3σ range
$(\sin^2 \theta_{12})/10^{-1}$	$3.20^{+0.20}_{-0.16}$	2.73 \rightarrow 3.79	$3.20^{+0.20}_{-0.16}$	2.73 \rightarrow 3.79
$(\sin^2 \theta_{23})/10^{-1}$	$5.47^{+0.20}_{-0.30}$	4.45 \rightarrow 5.99	$5.51^{+0.18}_{-0.30}$	4.53 \rightarrow 5.98
$(\sin^2 \theta_{13})/10^{-2}$	$2.160^{+0.083}_{-0.069}$	1.96 \rightarrow 2.41	$2.220^{+0.074}_{-0.076}$	1.99 \rightarrow 2.44
$\delta/^\circ$	218^{+38}_{-27}	157 \rightarrow 349	281^{+23}_{-27}	202 \rightarrow 349
$\Delta m_{21}^2 [10^{-5} \text{ eV}^2]$	$7.55^{+0.20}_{-0.16}$	7.05 \rightarrow 8.24	$7.55^{+0.20}_{-0.16}$	7.05 \rightarrow 8.24
$\Delta m_{32}^2 [10^{-3} \text{ eV}^2]$	2.424 ± 0.03	2.334 \rightarrow 2.524	$-2.50^{+0.04}_{-0.03}$	-2.59 \rightarrow -2.39

これより、ニュートリノが有限の質量を持つことが明らかになった。しかし、観測実験からわかっているのは、ニュートリノの質量二乗差である。2つの質量 m_1 , m_2 の大小関係は、MSW 効果 (太陽内部など物質密度の高い領域で発生した電子ニュートリノが弱い相互作用のポテンシャルを感じることで生じる効果) によって $m_1 < m_2$ と決まっているが、その他大小関係や質量の絶対値は決まっていない。ニュートリノ質量階層構造は図 1.8 に示されている。この質量階層構造より、3つのモデルが考えられる。

質量順階層 (Normal Ordering, NO) : $m_1 < m_2 < m_3$

質量逆階層 (Inverted Ordering, IO) : $m_3 < m_1 < m_2$

縮退構造 : $m_1 \approx m_2 \approx m_3$

この質量階層構造を決定するために、 $\beta\beta$ 崩壊観測実験、大気ニュートリノの精密測定、加速器を用いた長基線ニュートリノ振動実験などが進められている。加えて、ニュートリノの絶対質量の直接測定を目指す実験も行われている。KARTIN 実験 (Karlsruher Tritium Neutrino Experiment) では、式 (1.43) で表されるようなトリチウムの β 崩壊 (Q 値 18.6 keV) のエネルギースペクトルを測定する実験であり、スペクトルの Q 値付近の形がニュートリノの絶対質量によって変化することをを用いて測定を行なっている。

$${}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He} + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.43)$$

現在の質量に関して、

$$m_\nu < 0.8\text{eV}/c^2 \quad (90\% \text{C.L.}) \quad (1.44)$$

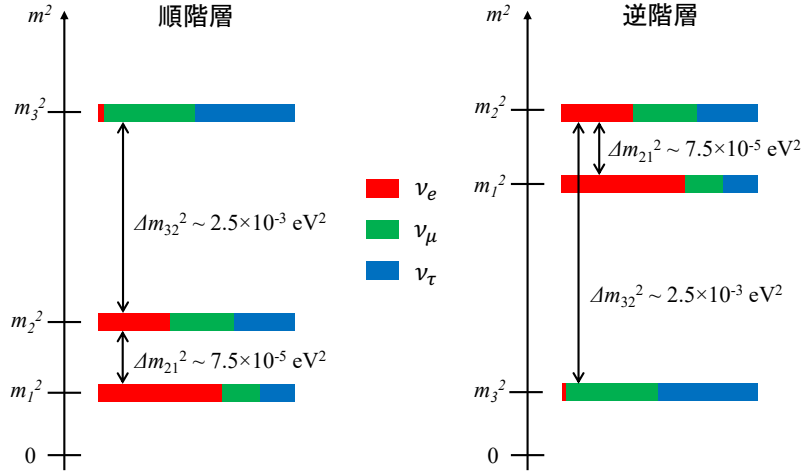


図 1.8 ニュートリノの質量階層構造。質量の 2 乗差は後述するニュートリノ振動観測実験で測定されているが、その絶対値や階層構造は決定されていない。

という制限が与えられている [22]。

また、その他の方法として、宇宙背景放射などの宇宙構造を解析することで、ニュートリノの絶対質量を測定する方法もある。ニュートリノが有限の質量を持つことによる宇宙膨張などへの影響を考えることで制限がつけられる。この方法では、ニュートリノの質量和が

$$\sum m_\nu < 0.16 \text{eV}/c^2 \quad (95\% \text{C.L.}) \quad (1.45)$$

という制限が与えられている [23]。

1.4 ニュートリノのマヨラナ性

マヨラナ性とは、粒子と反粒子が同一のものという性質である。電荷が中性であるニュートリノはマヨラナ性を持つ可能性があるが、その場合はディラック方程式においてマヨラナ質量項が導入できる。その時、後述するシーソー機構によってニュートリノの質量が非常に小さい (電子の 100 万分の 1 未満) ことの理由が説明できる。

1.4.1 ディラック質量

まずは、ディラック方程式を考える。マヨラナ性を持つためにはディラック方程式を満たし、粒子と反粒子が同一である必要がある。ディラック質量を m_D とした時にディラック方程式は、

$$(i\gamma^\mu \partial_\mu - m_D)\psi = 0 \quad (1.46)$$

と書くことができ、対応するラグランジアン密度 \mathcal{L} は

$$\mathcal{L} = \bar{\psi}(\gamma^\mu i\partial_\mu - m_D)\psi \quad (1.47)$$

となる。第一項は運動エネルギー、第二項はディラック質量項に対応する。ここで、ディラック質量項を取り出すと

$$\mathcal{L} = \bar{\psi} m_D \psi \quad (1.48)$$

とかける。ここで、カイラリティの射影演算子 P_R, P_L を導入すると、波動関数 ψ は

$$\psi = P_R \psi + P_L \psi = \psi_R + \psi_L \quad (P_R = \frac{1}{2}(1 + \gamma_5), P_L = \frac{1}{2}(1 - \gamma_5)) \quad (1.49)$$

となる。さらに、

$$P_R P_L = P_L P_R = 0, \quad \bar{\psi}_R \psi_R = \bar{\psi} P_L P_R \psi = 0, \quad \bar{\psi}_L \psi_L = 0 \quad (1.50)$$

という条件を用いて式 (1.48) を書き直すと

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_D &= m_D (\bar{\psi}_R + \bar{\psi}_L) (\psi_R + \psi_L) \\ &= m_D (\bar{\psi}_R \psi_R + \bar{\psi}_L \psi_L + \bar{\psi}_R \psi_L + \bar{\psi}_L \psi_R) \\ &= m_D (\bar{\psi}_R \psi_L + \bar{\psi}_L \psi_R) \end{aligned} \quad (1.51)$$

となる。式 (1.51) から、右巻きと左巻きニュートリノが作用し合うことでディラック質量を得られることがわかる。したがって、どちらか一方のカイラリティが0の場合、ディラック質量が0になる。

1.4.2 マヨラナ質量

もし、片方のカイラリティが0の場合でも、波動関数に対してマヨラナ条件 (式 (1.52)) を課すことで、質量項を導入することができる。

$$\psi = \psi^C \quad (1.52)$$

ψ^C は ψ の荷電共役である。この条件において、ディラック質量を用いたスカラー $\bar{\psi}\psi$ だけでなく $\bar{\psi}^C \psi, \bar{\psi} \psi^C$ を導入することができる。

以上の条件を用いて式 (1.48), (1.51) にならって計算すると、

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_M &= m_M (\bar{\psi}^C \psi + m'_M \bar{\psi} \psi^C) \\ &= m_M (\bar{\psi}_R^C \psi_L + \bar{\psi}_L^C \psi_R) + m'_M (\bar{\psi}_R \psi_L^C + \bar{\psi}_L \psi_R^C) \end{aligned} \quad (1.53)$$

と表される。スピノルの荷電共役は、

$$\begin{aligned} \psi_R^C &= (\psi_L)^C \\ \psi_L^C &= (\psi_R)^C \end{aligned} \quad (1.54)$$

であるから、式 (1.53) は左巻きのカイラリティのみを持つ項と右巻きのみを持つ項にマヨラナ条件 (式 (1.52)) を適用することで以下のようにまとめることができる。

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_M &= \mathcal{L}_R + \mathcal{L}_L \\ \mathcal{L}_R &= m_R \bar{\psi}_R \psi_R \\ \mathcal{L}_L &= m_L \bar{\psi}_L \psi_L\end{aligned}\tag{1.55}$$

以上より、右巻きと左巻きの粒子で独立の質量を持たせることができる。波動関数 ψ と荷電共役 ψ^C は電荷の符号を逆にした方程式にそれぞれ従うため、電荷を持つ粒子ではマヨラナ条件にしたがうと波動関数が方程式を満たさなくなる。したがって、電荷が 0 のニュートリノのみマヨラナ粒子であることが許容される。

1.4.3 シーソー機構

これまでの計算から、ディラック質量項とマヨラナ質量項をまとめると、ニュートリノのラグランジアンは、

$$\begin{aligned}\mathcal{L}_{mass} &= \mathcal{L}_D + \mathcal{L}_R + \mathcal{L}_L \\ &= m_D \bar{\psi}_L \psi_R + m_D \bar{\psi}_L^C \psi_R^C + m_L \bar{\psi}_L \psi_R^C + h.c. \\ &= (\bar{\psi}_L \quad \bar{\psi}_L^C) \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_R \\ \psi_R^C \end{pmatrix} + h.c.\end{aligned}\tag{1.56}$$

と表される。質量行列は、

$$M = \begin{pmatrix} m_L & m_D \\ m_D & m_R \end{pmatrix}\tag{1.57}$$

であり、この行列 M を対角化すると、

$$\begin{aligned}M &= \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(m_R + m_L) - \frac{1}{2}\sqrt{4m_D^2 + (m_R - m_L)^2} & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}(m_R + m_L) + \frac{1}{2}\sqrt{4m_D^2 + (m_R - m_L)^2} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} -m_1 & 0 \\ 0 & m_2 \end{pmatrix}\end{aligned}\tag{1.58}$$

となる。ここで、右巻きニュートリノが観測されていないことから右巻きニュートリノの質量が非常に重く、 $m_D \ll m_R$ として、左巻きニュートリノの質量が非常に軽い ($m_L \approx 0$) と仮定するとマヨラナ質量は

$$\begin{aligned}m_1 &\approx -\frac{1}{2}m_R + \frac{1}{2}m_R \sqrt{1 + \frac{4m_D^2}{m_R^2}} \approx \frac{m_D^2}{m_R} \ll m_D \\ m_2 &\approx \frac{1}{2}m_R + \frac{1}{2}m_R \sqrt{1 + \frac{4m_D^2}{m_R^2}} \approx m_R \gg m_D\end{aligned}\tag{1.59}$$

とかける。以上のように、ニュートリノがマヨラナ粒子であれば重い右巻きニュートリノを仮定することで、左巻きニュートリノの質量が非常に軽い理由も説明できる。また、右巻きニュートリノが発見されていない理由としても、質量が大きいために検証が不可な高エネルギーの物理が関係していると考えられる [24]。

ニュートリノのマヨラナ性を実証できる方法は現在一つ考えられており、それがニュートリノを伴わない二重 β 崩壊であり、これは次節 (1.5) で述べる。

1.5 ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$)

放射性崩壊の一種の β 崩壊は、 β 線 (電子) と反電子ニュートリノを放出する反応 (式 (1.60)) である。

$$n \rightarrow p^+ + e^- + \bar{\nu}_e \quad (1.60)$$

この β 崩壊は原子核内で発生しているが、稀に β 崩壊が二回同時に発生する現象がある。これは二重 β 崩壊 (Double beta decay) と呼ばれ、後述するニュートリノを伴わない二重 β 崩壊と比較して、 $2\nu\beta\beta$ と呼ばれている (式 (1.61), 図 1.9 左)。

$$2n \rightarrow 2p^+ + 2e^- + 2\bar{\nu}_e \quad (1.61)$$

この反応は弱い相互作用の二次のプロセスでレプトン数が保存する。通常の β 崩壊を二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、その崩壊寿命は長く、半減期は 10^{19} 年程度である。一方 $0\nu\beta\beta$ 崩壊 (式 (1.62), 図 1.9 右) 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。

$$2n \rightarrow 2p^+ + 2e^- \quad (1.62)$$

これは、一方の中性子から放出された右巻きの反ニュートリノが、有限の質量を持つことにより左巻きのニュートリノとしてもう一方の中性子に吸収されることで起こる反応である。通常の $2\nu\beta\beta$ 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 $0\nu\beta\beta$ 崩壊ではほぼ全てのエネルギーが二つの電子に分配されるため $2\nu\beta\beta$ 崩壊のスペクトルのエンドポイント付近に線スペクトルが見られるはず (図 1.10) であるが、未だ発見には至っていない。

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

$$T_{1/2}^{0\nu} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \langle m_{\beta\beta} \rangle^2 \quad (1.63)$$

$$\langle m_{\beta\beta} \rangle = \left| \sum_{i=1}^3 U_{ei}^2 m_i \right| \quad (1.64)$$

$G^{0\nu}$ は位相空間因子、 $M^{0\nu}$ は核行列要素と呼ばれ、理論計算により導出される。また U_{ei} は

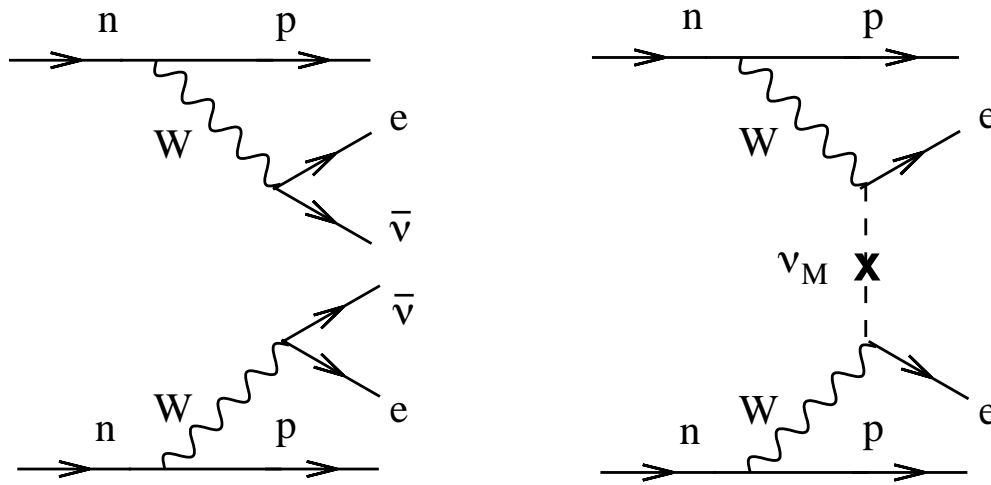


図 1.9 (左図) $2\nu 2\beta$ と (右図) $0\nu 2\beta$ のダイアグラム [25]。 ν_M はマヨラナニュートリノを表す。

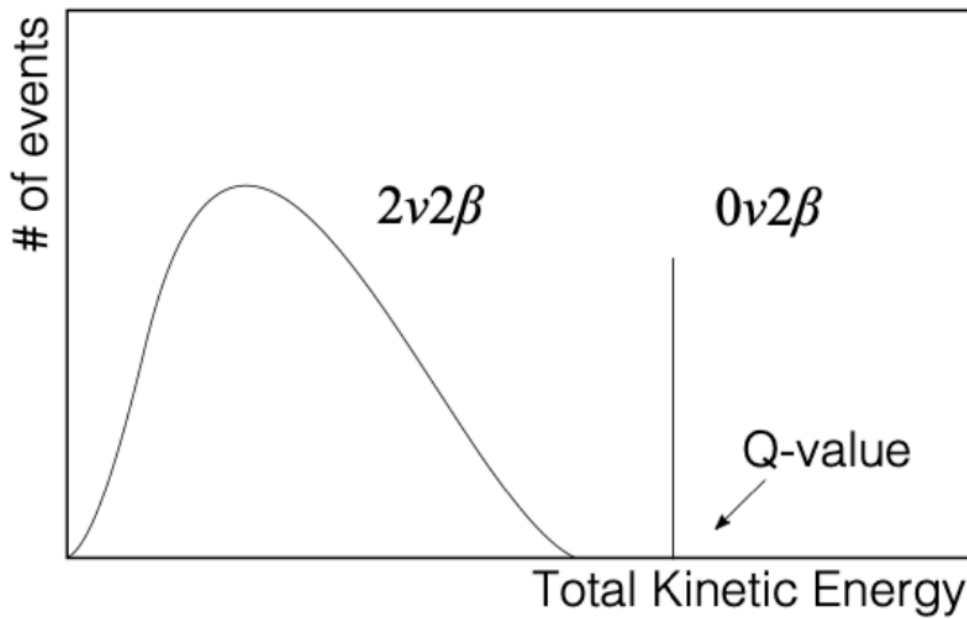


図 1.10 $\beta\beta$ 崩壊のエネルギースペクトル

ニュートリノのフレーバー固有状態、質量固有状態の混合行列である。 $\langle m_{\beta\beta} \rangle$ はニュートリノの質量の絶対値の情報を含む物理量であり、質量階層構造から予測される値の範囲が異なる。

$0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験としては KamLAND-Zen800 実験 [26] が挙げられる。KamLAND-Zen800 実験では、液体シンチレータ内に、二重 β 崩壊核種である ^{136}Xe を溶かすことで、図 1.11 に示すように $\langle m_{\beta\beta} \rangle < (36-156) \text{ meV}$ という現状最も厳しい制限を与えている。

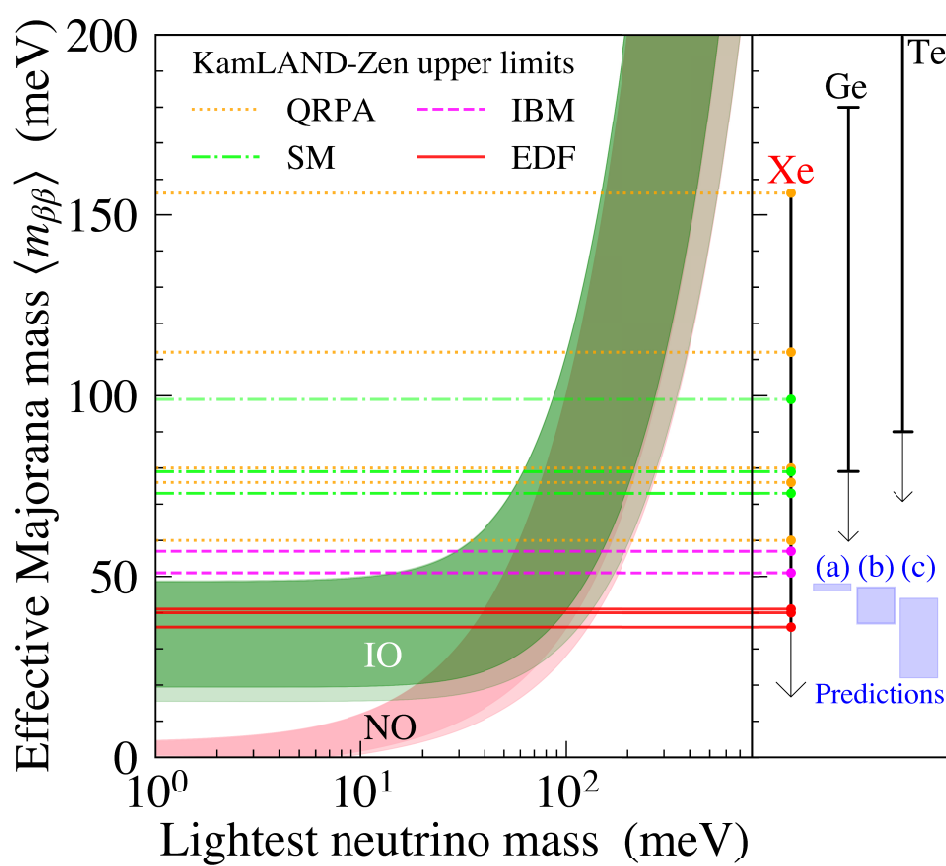


図 1.11 KamLAND-Zen800 で得られたマヨラナ有効質量への制限 [26]。

第 2 章

KamLAND2-Zen 実験

2.1 KamLAND 検出器

KamLAND (Kamioka Liquid-scintillator Anti-Neutrino Detector) 検出器は、神岡鉱山内に位置する反ニュートリノ検出器である (図 2.1 は周辺の概要図, 図 2.2 は検出器概略図)。検出器は、直径と高さがそれぞれ約 20 m の円柱状タンクでその内部に直径約 18 m の球状タンクが設置されている。また、池の山山頂地下約 1,000 m に設置されており、宇宙線ミュオンによる事象は地表の約 10 万分の 1 に低減されている。

KamLAND 実験では主に $\bar{\nu}_e$ の反応で生じるシンチレーション光を観測することで、特に原子炉ニュートリノ観測や地球ニュートリノ観測において成果を上げてきた。

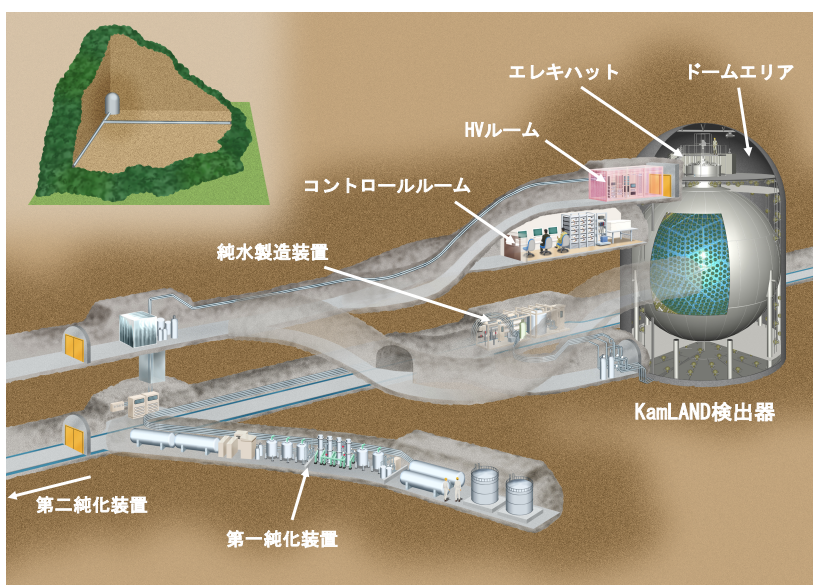


図 2.1 KamLAND 検出器とその周辺の様子

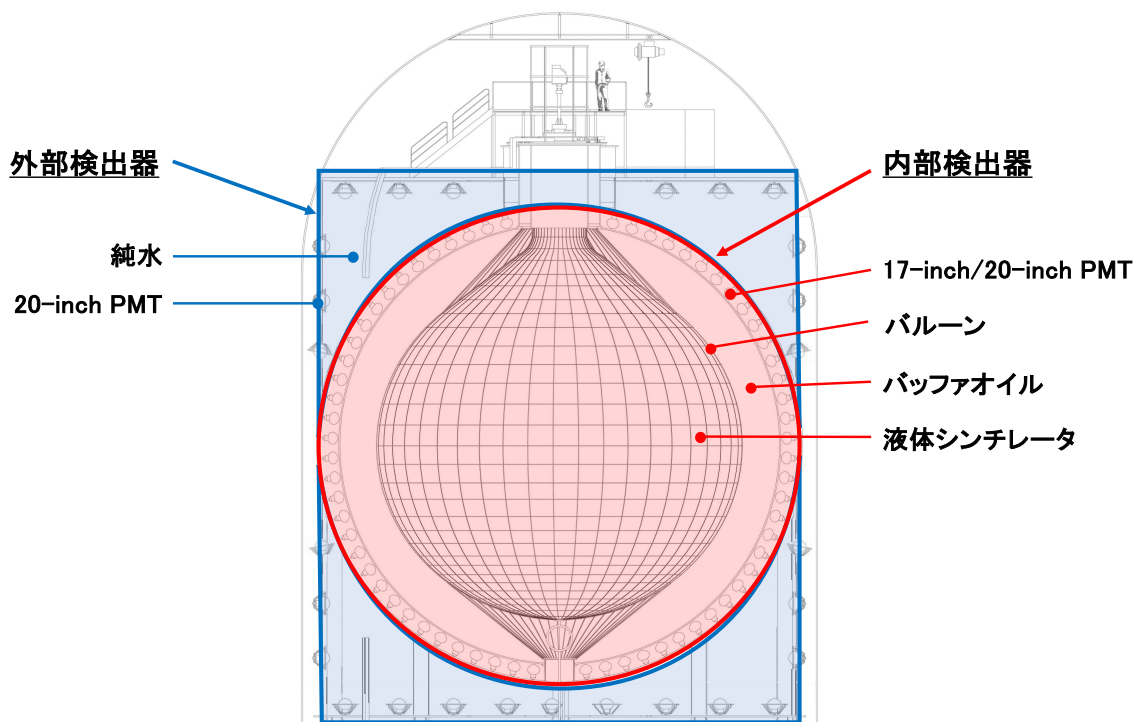


図 2.2 KamLAND 検出器の概略図

2.1.1 外部検出機 (Outer Detector)

外部検出器は、高さ・直径ともに約 20 m の円筒形の空洞で、そこは 3.2 kt の純水で満たされている。この純水は、検出器周辺の岩盤から出る β 、 γ 線や中性子を遮蔽する働きを持つ。また、宇宙線ミュオンが純水を通った際に生じるチェレンコフ光を PMT で検出することで、ミュオンによる背景事象を取り除いている。PMT は 225 本が外壁に内向きで設置されていたが、2016 年の改修工事以降は、配置や向きを調整した 140 本の PMT が外壁に設置されている。

2.1.2 内部検出機 (Inner Detector)

内部検出器は、直径約 18 m のステンレス製球状タンクの内側部分であり、直径 13 m のバルーンが吊り下げられている。バルーン内は、約 1 kt の液体シンチレータ (KamLS, 2.1.2 節で説明) で満たされており、外側は無発光のバッファオイルで満たされている。球状タンク壁面には、1879 本の PMT が設置されている。液体シンチレータ中で起きる物理現象であるシンチレーション光を PMT で検出している。

液体シンチレータ (KamLS)

シンチレータ内で荷電粒子がエネルギーを付与することでシンチレータ中の物質が励起され、その後基底状態に戻る過程 (脱励起) でシンチレーション光が等方的に放出される。KamLAND 実験では、大規模化や純化の簡単さを考慮して、有機化合物である液体シンチレータ (Liquid Scintillator, LS) を使用している。KamLAND 実験では、約 1kt の液体シンチレータがバルーン内に満たされている。また、成分は表 2.1 のようになっており、PC を溶媒とし、発光剤として PPO を使用している。N12 は発光過程には関わらないが、密度調整や透過率の低下を防ぐ効果がある。この液体シンチレータは KamLAND-LS や Kam-LS と呼ばれる。

表 2.1 KamLS の構成要素

物質名	分子式	密度	比率
ドデカン (N-12)	$C_{12}H_{26}$	0.749 g/cm ³	80%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C_9H_{12}	0.875 g/cm ³	20%
2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	$C_{15}H_{11}NO$	-	1.36 g/l
KamLS	-	0.77721 g/cm ³	-

バッファオイル

バルーンの外側から、PMT までの空間はバッファオイル (Buffer Oil, BO) と呼ばれる液体で満たされている (成分は表 2.2)。バッファオイルは、バルーンに浮力を与えたり、タンクや PMT に含まれる放射線を液体シンチレータに侵入させない役割がある。

アウターバルーン

内部検出器内の液体シンチレータを保持しておく、直径 13 m のバルーンをアウターバルーン (Outer Balloon, OB) と呼ぶ。透過率や強度を考え、ナイロンが 3 層、エチレン-ビニルアルコール共重合体 (EVOH) 製のフィルムが 2 層、合計 5 層で構成されている。また、バルーンは 44 本のケプラーロープで支えられている。

表 2.2 バッファオイルの構成要素。比率は体積比を表す。

物質名	分子式	密度	比率
ドデカン (N-12)	$C_{12}H_{26}$	0.749 g/cm ³	53%
イソパラフィン	C_nH_{2n+2}	0.795 g/cm ³	47%
バッファオイル	-	0.77690 g/cm ³	-

光電子増倍管 (Photomultiplier Tube, PMT)

光電子増倍管 (Photomultiplier Tube, PMT) とは、高い時間分解能をもち微小な光を電気信号に変換する検出器である。この機器によって、シンチレーション光を検出している。PMT の光電面にシンチレーション光が当たると光電効果によって光電子が放出される。この電子は、収束電極で加速されてダイノードへ導かれる。ダイノードで衝突し二次電子が放出されるという過程を繰り返して、 10^7 倍程度まで増幅される。KamLAND 実験では、内部検出器の球状の内壁に 20 インチの PMT が 554 本、17 インチの PMT が 1325 本設置されている。また、外部検出機の外壁には前述の通り内向きに 20 インチの PMT が 140 本設置されている。KamLAND 実験で使用している PMT の概略図は図 2.3 に、性能は表 2.3 に示す。

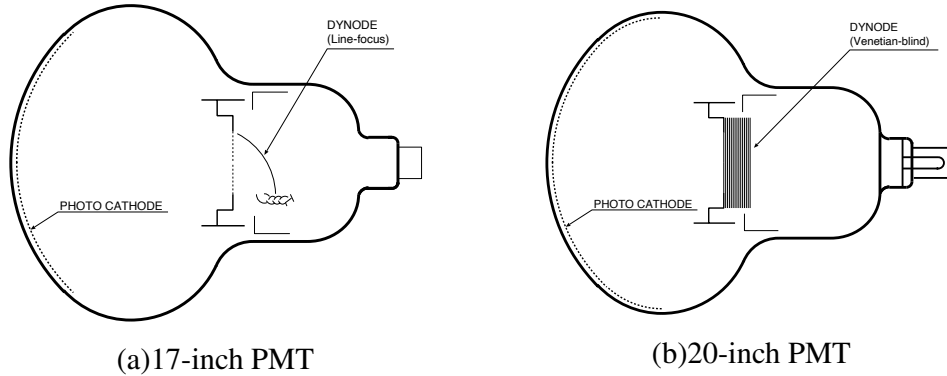
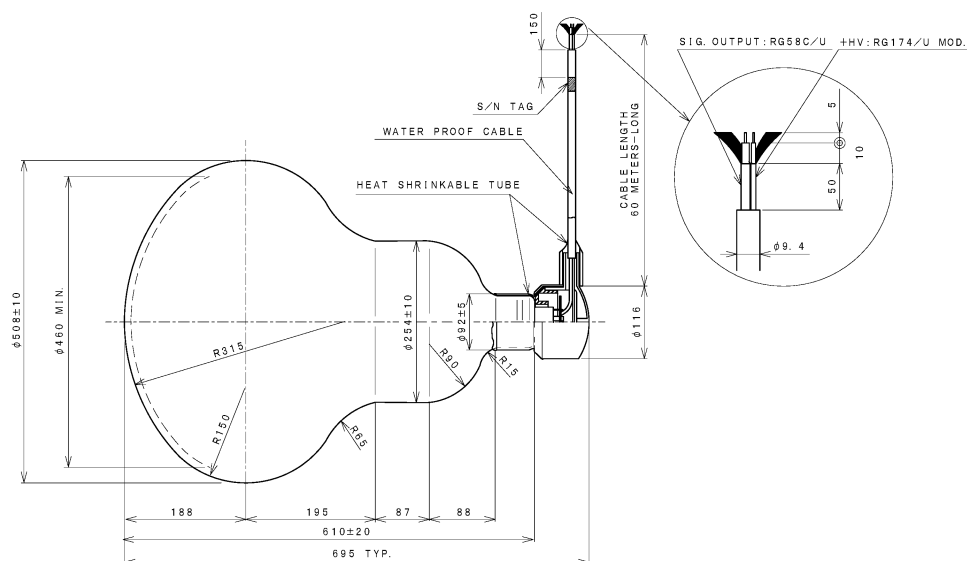


図 2.3 (a)17-inch PMT と (b)20-inch PMT の概略図

表 2.3 内部検出器 17-inch PMT と 20-inch PMT の性能。λ は入射光の波長を表す。

パラメータ	17-inch PMT	20-inch PMT
有効光電面 (ϕ [mm])	430	460
ダイノード	ボックス・ライン (10 段)	ベネシアンブラインド (13 段)
量子効率 ($\lambda = 390$ nm)	22%	23%
電子走行時間	110 ns	90 ns
電子走行時間の広がり	3.5 ns	7.7 ns
PV 比	3	1.5
ダークレート	22 kHz	40 kHz

また、外部検出器では 2016 年の改修工事で降新しい 20 インチの PMT(R3600-06MOD) が使用されており、この PMT の概略図は 2.4、性能は表 2.4 に示す。



UNIT : mm

図 2.4 R3600-06MOD の概略図

表 2.4 OD 20-inch PMT の性能。λ は入射光の波長を表す。

パラメータ	OD PMT	OD HQE PMT
有効光電面 (φ [mm])		460
ダイノード	ベネシアンブラインド (11 段)	
量子効率 (λ = 390 nm)	20–21%	32%
電子走行時間		95 ns
電子走行時間の広がり		5.9 ns
PV 比		1.6
ダークレート	17 kHz	25 kHz

2.2 KamLAND-Zen 実験

KamLAND-Zen(KamLAND Zero-neutrino double beta decay search) 実験は、KamLAND 検出器を使用した $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索実験である。この実験では、 ^{136}Xe の $2\nu\beta\beta$ 崩壊を利用するため、アウターバルーン内にさらにバルーンを導入し、その中を ^{136}Xe を溶かした液体シンチレータで満たしている。図 2.5 は模式図である。

この実験は、大きく二つのフェーズに分けることができる。初めが、KamLAND-Zen400、次が、KamLAND-Zen800 である。これらに関しては 2.2.1 節と 2.2.2 節で後述する。

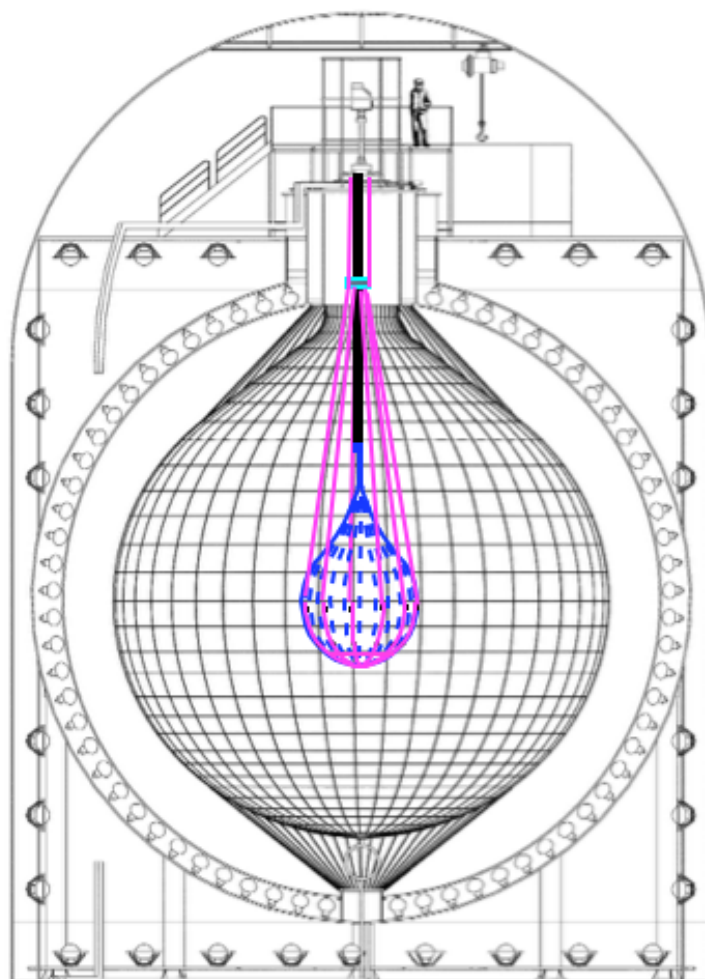


図 2.5 KamLAND-Zen 実験における検出器模式図

Xe 含有液体シンチレータ

この実験では、遠心分離によって ^{136}Xe の同位体比が (90.85 ± 0.13) まで濃縮されたキセノンを溶かし込んだ液体シンチレータが使用されており、これは Xe-LS と呼ばれる (成分は表 2.5)。Xe-LS を作成するにあたって、キセノンを溶解することによる密度増加を調節するため、Kam-LS で使用されているドデカンから低密度のデカンに変更した。また、キセノンのような原子量が大い原子による重元素クエンチングによる発光量の低下を補うために PPO の量を 2.7 g/L まで増加させている。

インナーバルーン

Xe-LS は KamLAND 検出器中心部のインナーバルーン (Inner Balloon, IB) 内に満たされている。このバルーンはミニバルーンとも呼ばれ、厚さ $25 \mu\text{m}$ のナイロンフィルムで作成されてい

表 2.5 Xe-LS の構成要素

物質名	分子式	密度	比率
デカン (N-10)	C ₁₀ H ₂₂	0.735 g/cm ³	82.4%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C ₉ H ₁₂	0.875 g/cm ³	17.6%
2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	C ₁₅ H ₁₁ NO	—	2.7g/L
キセノン	Xe	—	3.13 wt%
Xe-LS	-	0.777 g/cm ³	-

る。これは、高透過率・耐性・低放射性不純物を考慮している。

IB に Xe-LS を満たすことで、 $0\nu\beta\beta$ の探索範囲を KamLAND 検出器中心部の狭い範囲に制限することができる。これにより、太陽ニュートリノや宇宙線による原子核破碎事象などの体積に比例するバックグラウンド事象を低減させている。後述の KamLAND-Zen400 実験では直径 3.08 m、KamLAND-Zen800 実験では直径 3.80 m の IB を用いている。

2.2.1 KamLAND-Zen400 実験

KamLAND-Zen400 実験は 2011 年 10 月から 2012 年 6 月までのフェーズと 2013 年 12 月から 2015 年 10 月までのフェーズがある。第一のフェーズにおいては、¹³⁶Xe の Q 値付近に ^{110m}Ag 由来のバックグラウンドが確認された。^{110m}Ag は自然界に存在しない核種であり、福島原発事故により生成・放出されたものがミニバルーン作成時表面に付着したものであると考えられた [27]。^{110m}Ag 除去のために LS とキセノンを純化することでバックグラウンドを 10 分の 1 以下にした、第二のフェーズが始まった。第一フェーズと純化後以降の第二フェーズを合わせた解析から、¹³⁶Xe の $0\nu\beta\beta$ 半減期の下限値が $T_{1/2}^{0\nu\beta\beta} > 1.07 \times 10^{26}$ yr (90 % C.L.) と、ニュートリノ有効マヨラナ質量の上限値 $\langle m_{\beta\beta} \rangle < 61 - 165$ meV という世界で最も厳しい制限を与えている [28]。また、図 2.6 は解析から得られたエネルギースペクトルである。

2.2.2 KamLAND-Zen800 実験

2019 年 1 月より濃縮キセノン量を 745 kg にする、KamLAND-Zen800 実験が開始した。Xe-LS を導入する IB は、Zen 400 からならってクリーン環境で製作しバルーン起源バックグラウンドを 10 分の 1 以下に抑えた。加えて、¹⁰C などの宇宙線起源のバックグラウンドについてもミュオンの飛跡に沿った発光量からシャワー発生点を評価するツールを開発し、¹⁰C 事象について 99.3% の除去効率を実現している。結果としては、半減期の下限値が $T_{1/2}^{0\nu\beta\beta} > 2.3 \times 10^{26}$ yr (90 % C.L.) と、ニュートリノ有効マヨラナ質量の上限値 $\langle m_{\beta\beta} \rangle < 36 - 156$ meV という結果を得た。図 2.7 には得られたエネルギースペクトル、図 1.11 にはマヨラナ質量についての制限を示している。

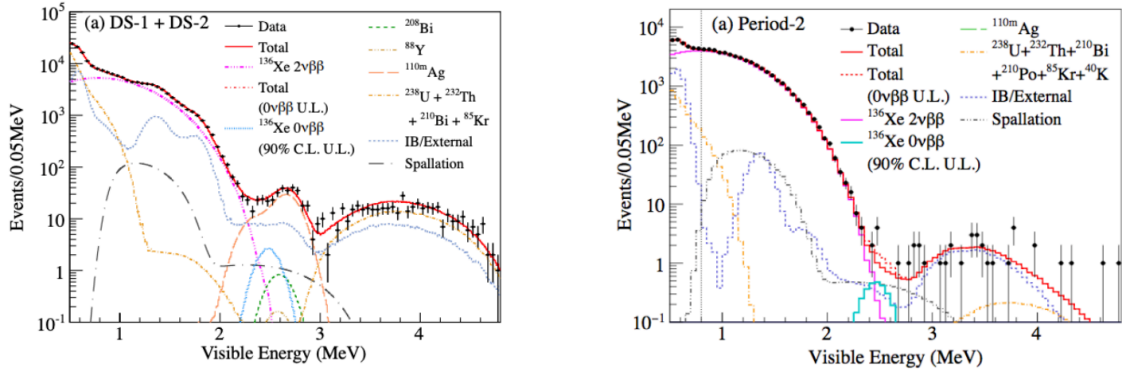


図 2.6 KamLAND-Zen400 実験のエネルギースペクトル [27, 28]。(左図) 第一フェーズ、(右図) 第二フェーズ

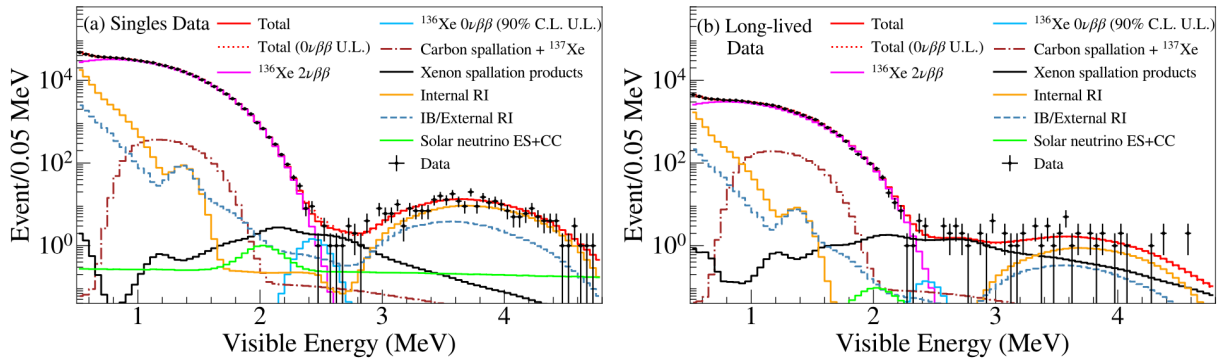


図 2.7 KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル [29]。(左図) $0\nu\beta\beta$ candidate data set (右図) 宇宙線による原子核破碎事象 (long lived product) data set

2.3 KamLAND-Zen 実験の背景事象

$0\nu\beta\beta$ 崩壊は非常に稀な反応であり、バックグラウンド事象の低減が重要である。ここでは、KamLAND-Zen 実験における主要なバックグラウンドについて述べる。

2.3.1 ^{136}Xe の $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象

KamLAND-Zen において、 $\beta\beta$ 崩壊を検出するためには、以下の反応式 (2.1),(2.2) によって放出された電子が液体シンチレータを光らせ、その光を PMT で検出してエネルギーを測定している。

$$0\nu\beta\beta : \quad ^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{136}\text{Ba} + 2e^- \quad (2.1)$$

$$2\nu\beta\beta : \quad ^{136}\text{Xe} \rightarrow ^{136}\text{Ba} + 2e^- + 2\bar{\nu}_e \quad (2.2)$$

1.5 節で述べたように、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊のエネルギースペクトルは、線スペクトルとなる (図 1.10)。実際検出する際は、検出器の分解能によって、ピークが幅を持ち $2\nu\beta\beta$ 崩壊スペクトルと重なってしまうため、分解能の向上が必要である。

2.3.2 ^{10}C の崩壊事象

KamLAND 検出器は池の山山頂地下 1000 m に位置しており、宇宙船由来のバックグラウンドを低減させているが、宇宙線ミュオンが約 0.3 Hz 程度で検出されている。このミュオンにより、液体シンチレータ中の ^{12}C が原子核破砕を起こし、 ^{10}C が生成される。 ^{10}C の半減期 19.3 秒、Q 値 3.6 MeV での β^+ 崩壊が $0\nu\beta\beta$ 崩壊のバックグラウンドとなる。この崩壊では、90% 以上の確率で中性子が放出されるため、飛来したミュオンと LS 中による中性子捕獲・ ^{10}C の β^+ 崩壊信号における遅延同時計測によって、バックグラウンドを除去している。

2.3.3 Xe の崩壊事象

KamLAND-Zen 800 の主要なバックグラウンドとなっているのが、Xe の崩壊事象である。 ^{10}C の崩壊事象同様、宇宙線ミュオンにより XeLS 中の Xe が原子核破砕を起こす。Xe の場合、Xe 原子核付近の大きさまでの様々な種類の原子核が生成されている。図 2.8 は、連続的に生成されたあと娘核の崩壊まで含めたエネルギースペクトルである [30]。この事象は、ミニバルーン全体だと $0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の ROI に年間 20 イベントほどであると見積もられている。C の原子核破砕が年間 70 イベントであるのに対して量は少ないが長寿命の原子核が多く、解析での除去が難しい。従来は破砕生成物の周りの中性子捕獲イベントについて、(1) 近くにある有効な中性子イベント数、(2) 近くの中性子までの距離、(3) 起源となったミュオンとの時間の 3 つ用いて最尤推定法をベースとしたタグを開発することで除去していた。将来的には機械学習による PID(粒子識別)でも除去が可能になる [31]。

2.3.4 ^{214}Bi の崩壊事象

LS 中の核種

LS 中には、 ^{238}U 系列の核種が存在し、それらの核種が ^{214}Bi に崩壊する。 ^{214}Bi は Q 値 3.27 MeV の β 崩壊を起こすためバックグラウンドとなる。図 2.10 は ^{238}U 系列の崩壊図である。

ミニバルーン内の ^{214}Bi

ミニバルーンにも LS 同様に、工場でのナイロン作成時に ^{238}U 系列の放射性不純物が含まれている。 ^{238}U 系列の娘核である ^{214}Bi が崩壊することで発生する β 線が ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の領域に重なるため感度の低下を招いている。対策としては、 ^{214}Bi の β 崩壊とその後に生成される ^{214}Po の α 崩壊信号との遅延同時計測で識別可能である。しかし、 α 線はミニバルーン内で吸収されている (図 2.11 は概念図)。従って、現在 KamLAND-Zen 実験においては、 ^{214}Bi 崩壊事象が少ないミニバルーン中心部に限定して探索を行っている。

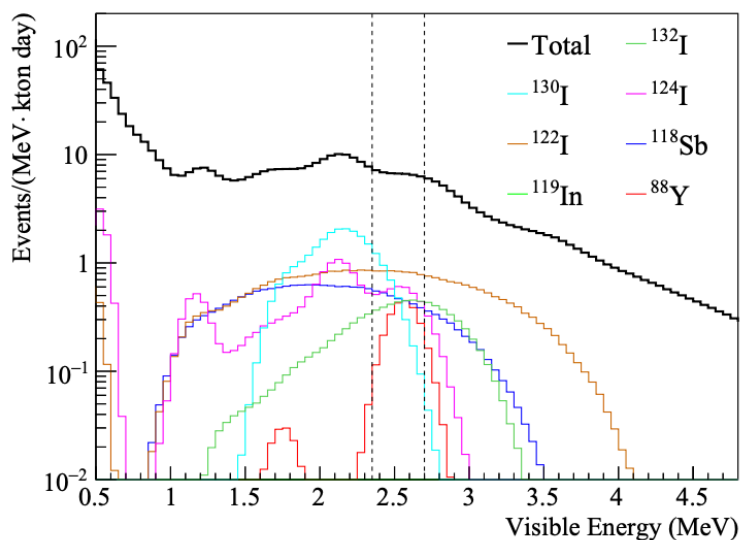


図 2.8 KamLAND-Zen 実験で見られる Xe 原子核破砕バックグラウンドのエネルギースペクトル [30]。黒線が合計のスペクトルである。ここでは、ROI に寄与の多い 7 種類がピックアップされている。

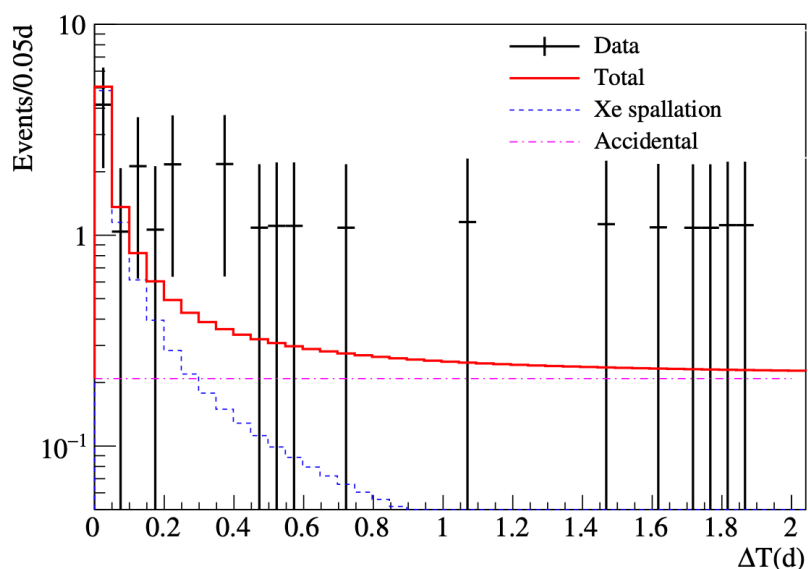


図 2.9 e 原子核破砕事象の候補イベントと宇宙線ミュオン事象との時間相関図。黒点がデータで、赤実線がフィットされたアクシデンタルと Xe 原子核破砕事象の時間分布の合計スペクトル [30]。

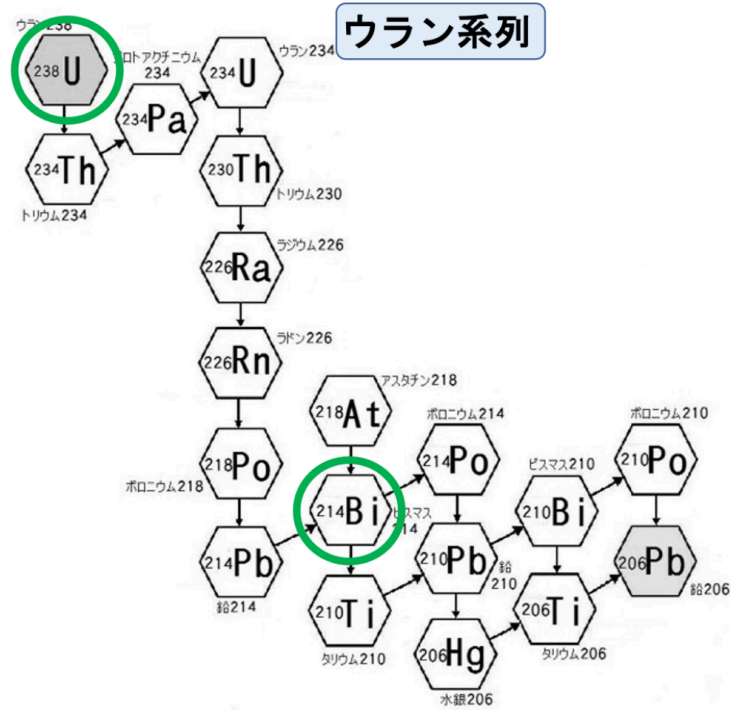


図 2.10 ^{238}U 系列の核種崩壊図 [32]

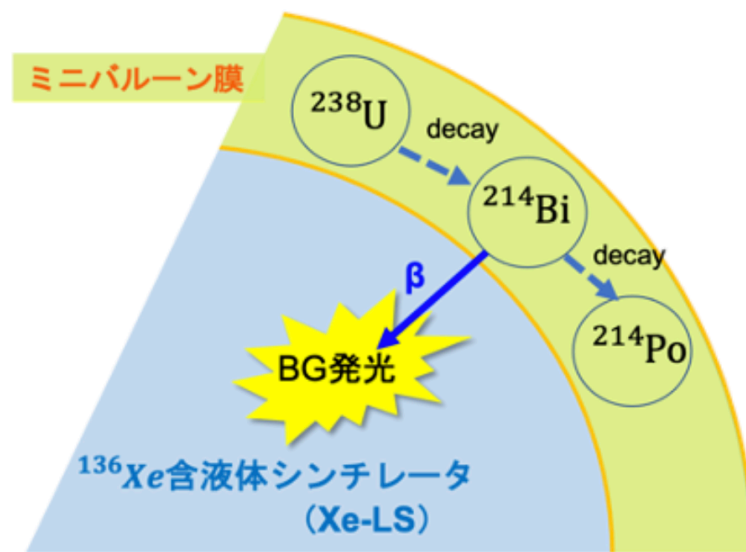
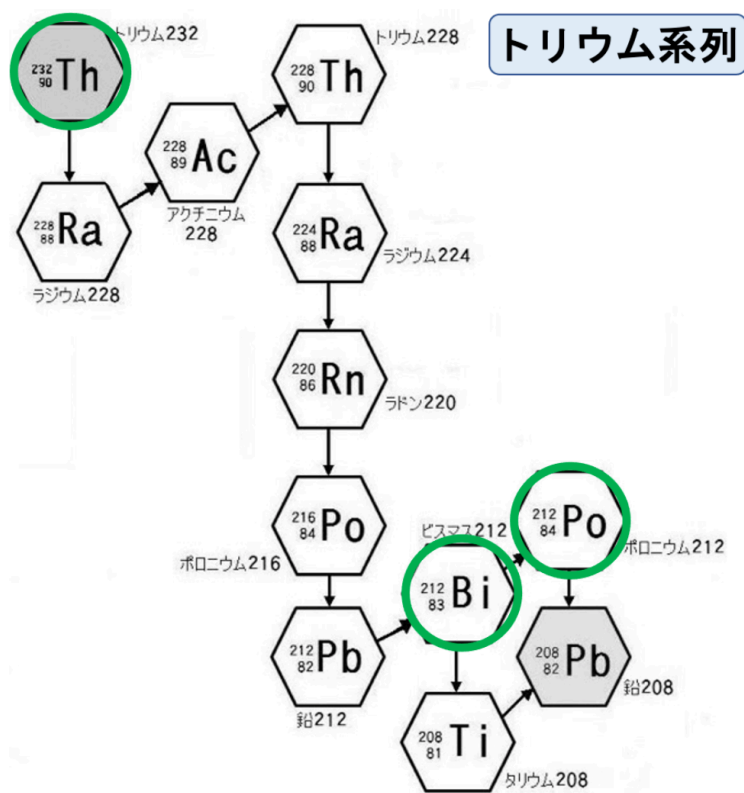


図 2.11 ミニバルーンにおける ^{214}Bi バックグラウンドイメージ図 [32]

図 2.12 ^{232}Th 核種崩壊図 [32]

2.3.5 ^{212}Bi と ^{212}Po のパイルアップ事象

ここでは、 ^{232}Th 系列からのバックグラウンドについて述べる (核種崩壊図は図 2.12)。 ^{212}Bi は Q 値 2.25 MeV の β 崩壊を起こし、 ^{212}Po は α 崩壊 (半減期 0.299 μs) を起こす。 ^{212}Po の α 崩壊で放出される α 線 (8.8 MeV) は液体シンチレータ内で消光し、0.73 MeV になる。 $0\nu\beta\beta$ において、注目しているエネルギースペクトルは 2.35-2.7 MeV であり、 ^{212}Bi と ^{212}Po のパイルアップ事象と重なってしまうため、バックグラウンドとなる ([33], 図 2.13)。

2.4 KamLAND2-Zen 実験 (将来計画)

KamLAND-Zen 実験は世界最高感度で $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索を行っているが、発見には至っていない。そこで機械学習での位置再構成、エネルギー再構成、バックグラウンド除去力の向上などのソフトウェアにおける改良や、デッドタイムフリーエレクトロニクスを導入による宇宙線由来のバックグラウンド除去力向上も考えられている。

また、検出器においても改良が予定されており、大きく二つに分けることができる。それは、2.4.1 節で述べる「バックグラウンドの低減」と 2.4.2 節で述べる「集光量の増加」である。

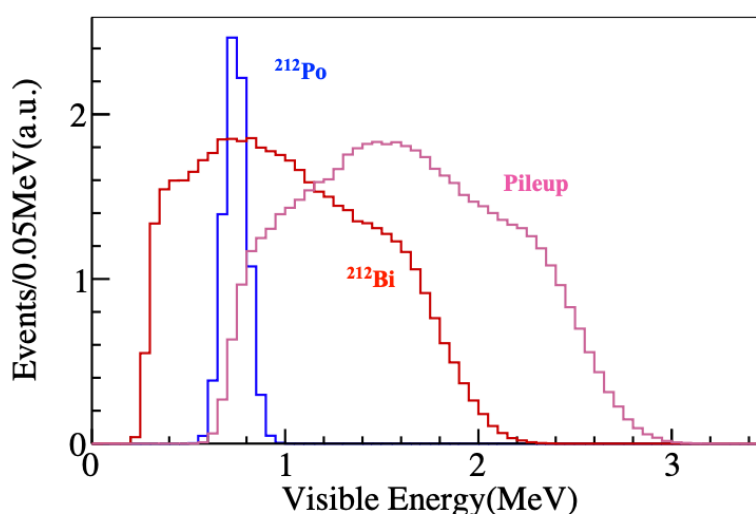


図 2.13 パイルアップイベントの Visible Energy[33]。 $0\nu\beta\beta$ のエネルギースペクトルは 2.35-2.7MeV であり、パイルアップイベントと重なっていることがわかる。

2.4.1 バックグラウンドの低減

発光性ミニバルーン PEN の導入

前述の通り、現在の KamLAND-Zen 実験のバックグラウンドとして ^{214}Bi の β 崩壊 (Q 値 3.27 MeV) がある。この事象は、 ^{214}Po の α 崩壊信号との遅延同時計測で識別可能である。しかし、現在のミニバルーンフィルム内では α 線が吸収されるため識別不可である。そこで、発光性を有するフィルムを使用したミニバルーン製作が計画されている。そうすることで、 α 線がミニバルーンフィルム内で発光し、遅延同時計測が可能になる (図 2.14)。フィルムの素材としては、ポリエチレンナフタレート (Polyethylene Naphthalate, PEN, 図 2.15) が候補として考えられている。PEN フィルムを用いることで ^{214}Bi バックグラウンドは 99.7% 除去出来ると見込まれている [34]。

2.4.2 集光量の増加

高量子効率 PMT の導入

PMT において、光子が光電面に入射して光電子へ変換される際の確率を量子効率と呼ぶ。これは、入射する光子の波長によっても変化する。量子効率が高いほど、検出効率や信号の大きさが向上する。現在 KamLAND-Zen 実験で使用されている 17 インチ PMT の量子効率は最大でも 20% 程度であるのに対し、KamLAND2-Zen 実験で使用予定の 20 インチ PMT の量子効率は最大およそ 30% である (図 2.16, [35, 36])。これにより、1.9 倍の集光量が見込まれている。

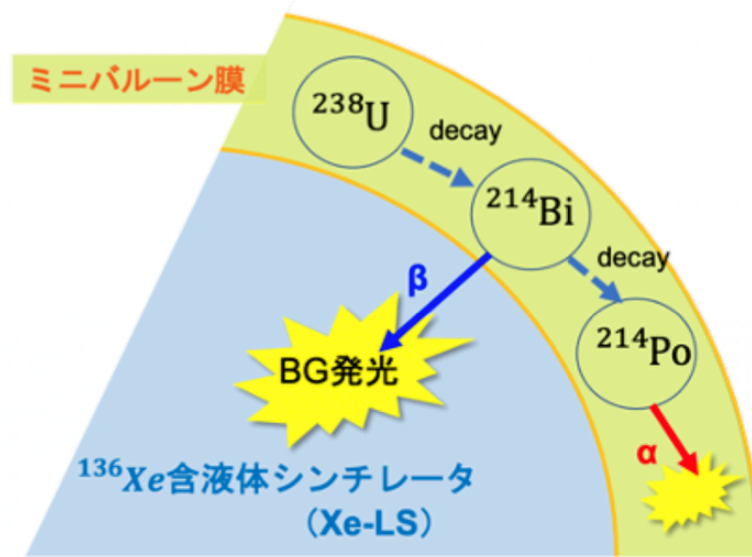


図 2.14 ミニバルーン PEN における ^{214}Bi バックグラウンドの除去イメージ図 [32]

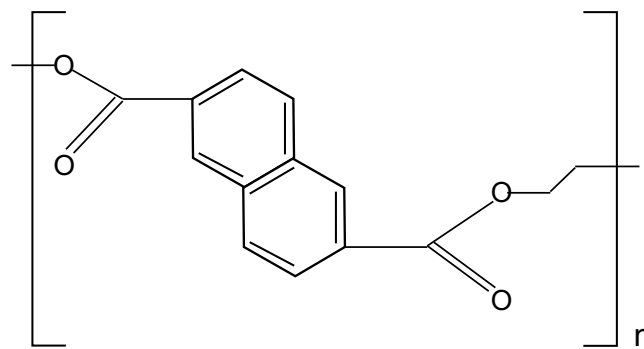


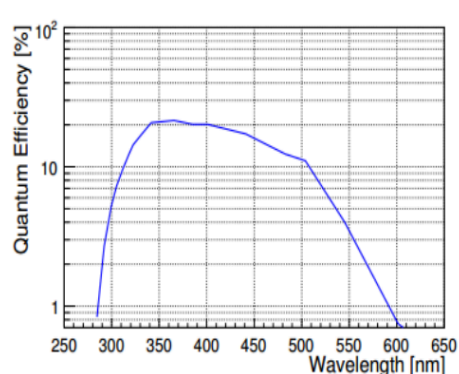
図 2.15 PEN の構造式

集光ミラーの導入

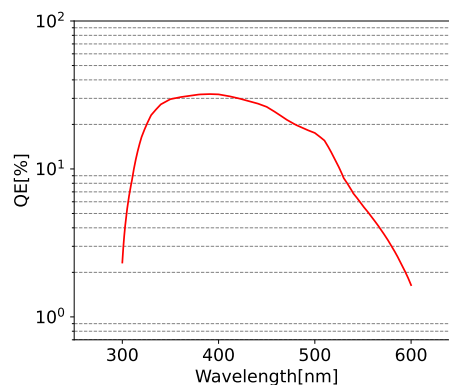
現在 KamLAND-Zen 実験における PMT の被覆率は 34% 程度である。そこで、PMT に多角形型の集光ミラーを取り付けることで実質的な光電面の被覆率の向上が計画されている。この集光ミラーの導入で集光量が 2 倍以上向上することが期待されている [37]。

大光量新液体シンチレータの開発

現在 KamLAND で使用されている Kam-LS を改良して、さらに発光量の大きい液体シンチレータを作成することでエネルギー分解能の向上が計画されている。ベースとしては、リニアアルキルベンゼン (LAB) が考えられている。LAB を使用することで、発光量と透過率の向上が期待されており、1.4 倍の集光量を目標としている [38]。この液体シンチレータは LAB-LS と呼び、この LS には、波長変換剤として Bis-MSB が導入されている。理由としては、PEN フィルムを



(a) KamLAND 実験での PMT



(b) KamLAND2-Zen 実験で使用予定の PMT

図 2.16 現在と新型の PMT の QE((a)KamLAND 実験での PMT[35], (b)KamLAND2-Zen 実験で使用予定の PMT)

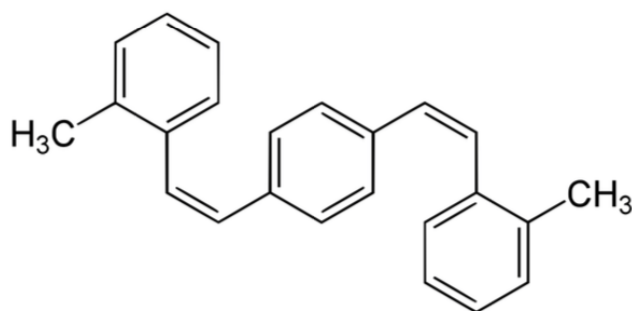


図 2.17 Bis-MSB の構造式

導入するにあたりフィルムの透過率をみると PPO の発光では PEN フィルムを透過せず、より長波長側への波長変換が必要になったからである。

以上より、先行研究 [32] 段階では LAB-LS の構成要素は表 2.6 の通りである。

Xe の増量

現在 Xe-LS では濃縮 Xe が 745 kg 使用されているが、約 1000 kg への増量を計画している。これにより、ミニバルーンの直径を 3.8 m から約 4 m に拡大することが予定されている。また、Xe を溶かし込むことでクエンチングが起こることがわかっているが、LAB-LS では Xe を溶かした際の発光量などの評価はされていない。これについては本研究で扱っており、この結果で LAB-LS の構成要素の変更も考えられる。

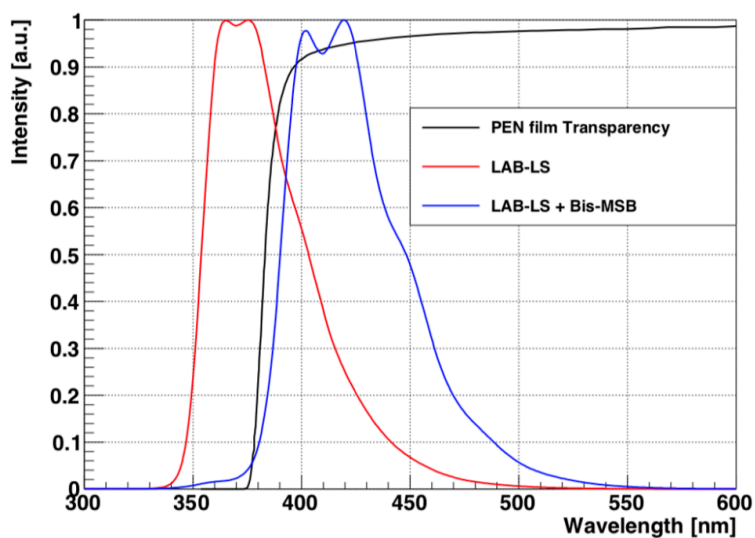


図 2.18 PEN の透過率、LAB-LS における Bis-MSB 有無での発光スペクトルでの違い [32]

表 2.6 先行研究段階での新 LS の構成要素

物質名	分子式	密度	比率
リニアアルキルベンゼン (LAB)	$C_{21}H_{36}$	0.85 g/cm^3	80%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C_9H_{12}	0.875 g/cm^3	20%
2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	$C_{15}H_{11}NO$	—	2.0g/L
1,4-ビス (2-メチルスチリル) ベンゼン (Bis-MSB)	$C_{24}H_{22}$	—	5.0 mg/L
LAB-LS	-	0.873 g/cm^3	-

第 3 章

液体シンチレータの諸特性

本章では、Xe を溶解して測定することができない液体シンチレータの特性について測定した結果をまとめている。これらのパラメータは今後シュミレーションを行う場合に重要なパラメータとなってくる。

3.1 蛍光スペクトル測定

3.1.1 研究背景

KamLAND2-Zen 実験に向けて、PEN フィルムを導入することは 2.4.1 でも述べたとおりである。

PEN フィルムの透過率と現在の液体シンチレータの蛍光スペクトル (励起波長 300 nm) を比べると、発光のピークは PEN を透過しないことがわかる (図 3.1)。

先行研究 [32] により、Bis-MSB の量は 5 mg/L と決定されていた。その再現の確認として、高精度の電子天秤を使用して再測定を行なった。

3.1.2 測定方法

測定に際して、蛍光光度計 F-2700(日立ハイテクサイエンス製) を使用し、キセノンランプにより特定の波長の光を LS に当て、LS の発光波長の強度を測定した (概略図は図 3.2, 3.3)。

サンプルは 1 cm の蓋付の石英セルを使用し、サンプルをセルに入れる際には液体を窒素バブリングしてからセルに入れて蓋をした。消光効果をなくし、実際の KamLAND での条件と同等にするためである。その後励起波長 300 nm から 600 nm で蛍光波長 300 nm から 600 nm を 1 nm 刻みで測定を行なった。また、サンプル (Bis-MSB) の計量は高精度の電子天秤 BM-22(エー・アンド・デイ社) を用いて行なった。

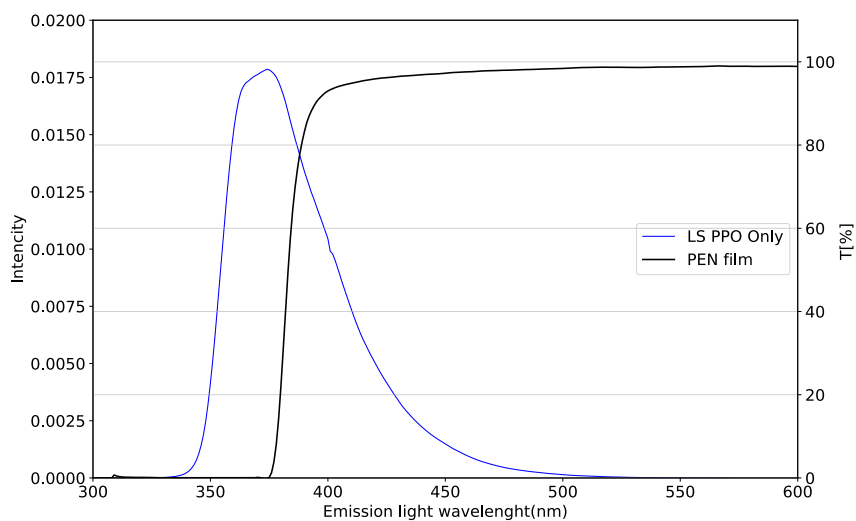


図 3.1 LS の蛍光スペクトル (左軸)。励起波長は 300 nm としている。参考として、PEN フィルムの透過率を表示している (右軸)。

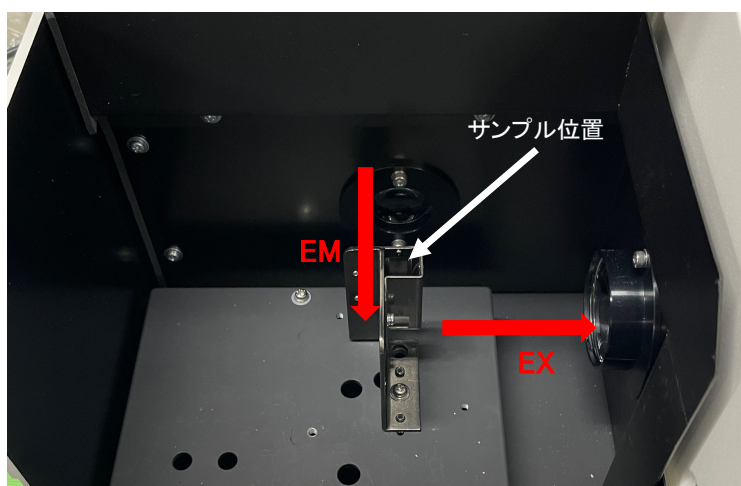


図 3.2 蛍光スペクトル測定の実際のセットアップ。上の EX 側から励起波長が照射されて、LS で発光した光が右の EM 側に入り、PMT で検出される。

3.1.3 結果測定

今回比較にあたって、励起波長 300 nm の時の蛍光スペクトルを用いた。Bis-MSB に関しては 5 mg/L から 20 mg/L まで測定を行なった。

結果は全て、面積で規格化をしている。測定結果を図 3.5 に示す。今回の測定を見てみると、Bis-MSB が 5 mg/L では波長変換後のスペクトルにおける二つのピークの短波長側が大きくなってしまっている。長波長側のピークが明らかに高くなるのは、15 mg/L 以上となり、15 mg/L が

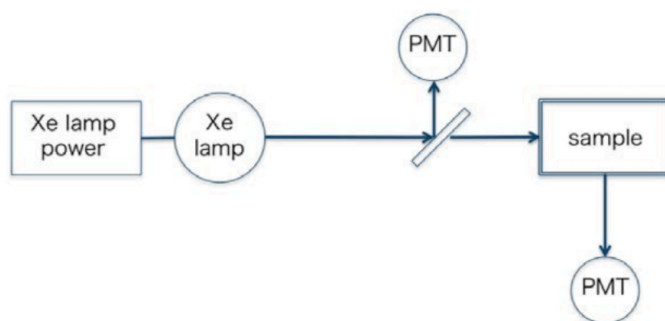


図 3.3 蛍光スペクトル測定の概略図。

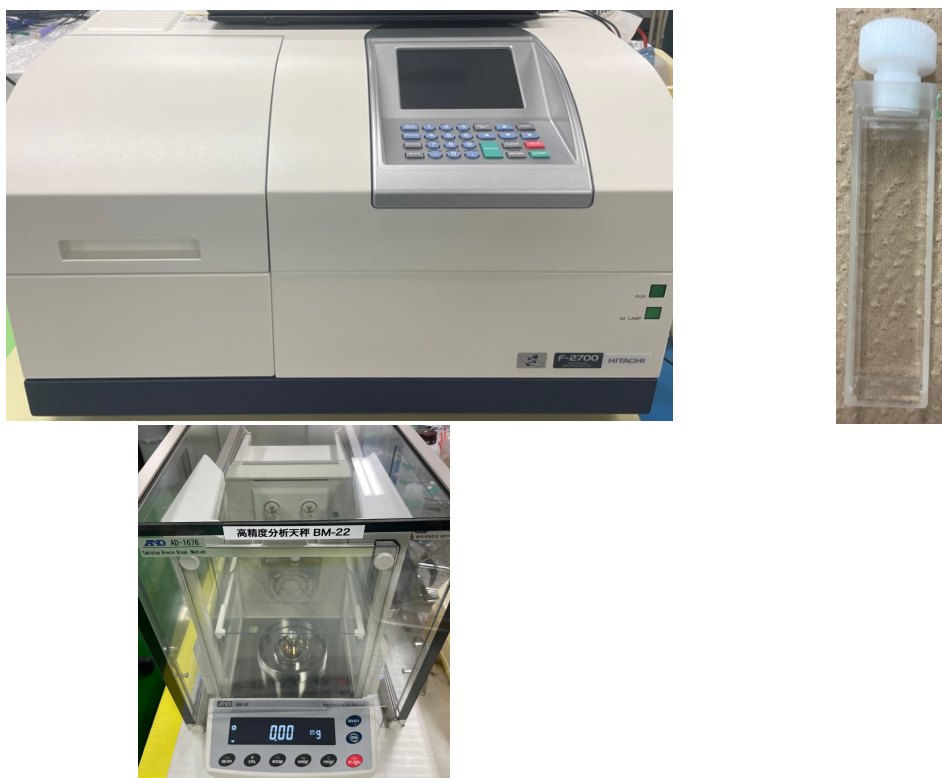


図 3.4 蛍光スペクトルで使用する機器・器具。左上図: 蛍光光度計 F-2700(日立ハイテクサイエンス製)、右上図: 石英セル (蓋付)、左下図: 高精度電子天秤 BM-22(エー・アンド・デイ社)

最低限十分に波長変換するとした。

最後に、先行研究との比較を示す(3.6)。結果を見ると 15 mg/L で先行研究と一致していることがわかる。したがって、Bis-MSB の量に関しては 15 mg/L に修正して今後の測定を行うことにする。また、この時の LS の組成は表 4.3 のようになり、これを「LAB based-LS」と呼ぶことにする。

Bis-MSB は 15 mg/L 非常に少量であり、ほぼ密度への影響がない。実際、密度への影響はオーダーで $+10^{-5}$ g/cm³ 程度である。文献値で得られるサンプルの密度は 10^{-3} g/cm³ までの値であ

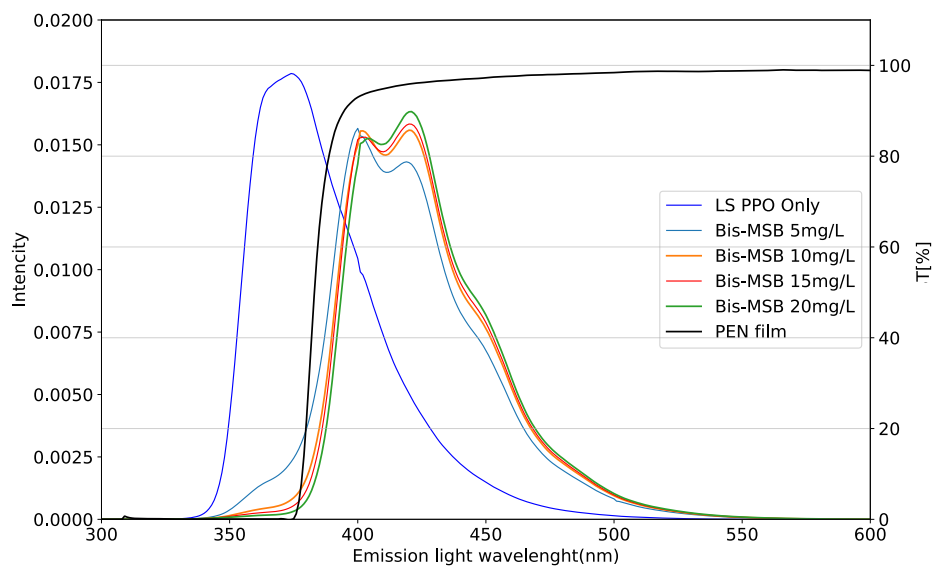


図 3.5 Bis-MSB の量の変化による蛍光スペクトルの変化 (左軸)。励起波長は 300 nm としており、Bis-MSB は 5 mg/L から 20 mg/L まで測定。参考として PEN フィルムの透過率を表示している (波線、値は右軸)

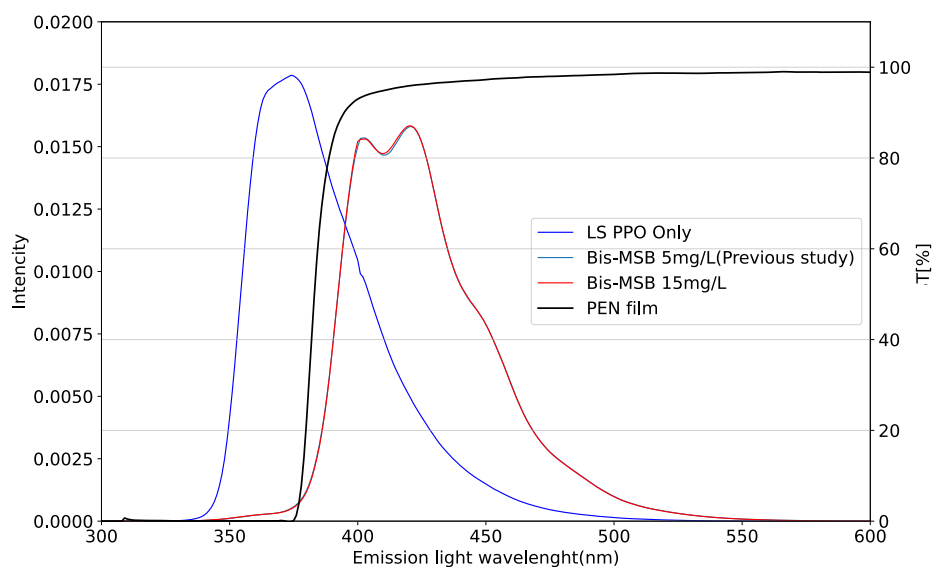


図 3.6 先行研究との蛍光スペクトル比較 (左軸)。励起波長は 300 nm としており、参考として PEN フィルムの透過率を表示している (波線、値は右軸)。先行研究とほぼ一致していることがわかる。

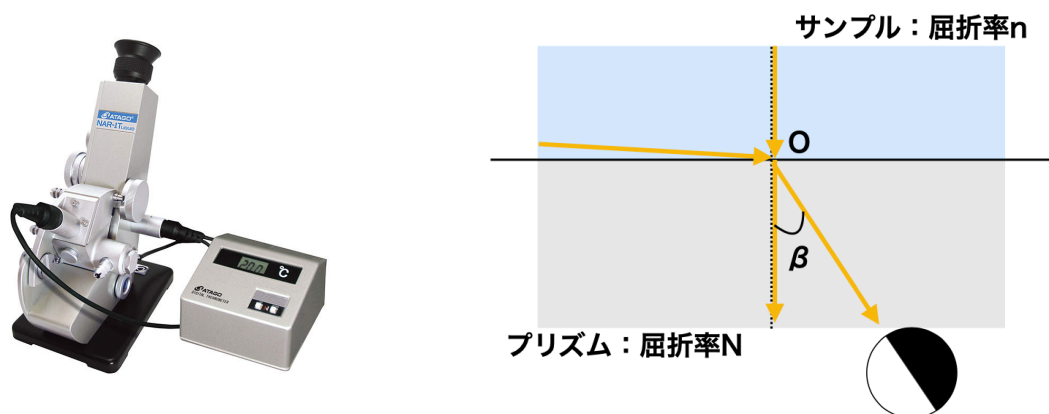


図 3.7 左図：アッペ屈折計 NAR-1T LIQUID(アタゴ製)、右図：臨界角法の概念図

るためほぼ無視できる。

3.2 屈折率測定

屈折率も蛍光スペクトル同様、シミュレーションを行うにあたって重要なパラメータの 1 つである。今回は、新液体シンチレータの候補である LAB based-LS と N10-LS+Bis-MSB について測定を行う (LS の組成は表 4.3, 4.2)。新液体シンチレータの候補に関する詳細は、4 章で説明する。

3.2.1 測定原理

測定には、アッペ屈折計 NAR-1T LIQUID(アタゴ製) を用いた。この屈折計では臨界角法を使ってサンプルの屈折率を測定する。臨界角法の概念図は図 3.7 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 以上に屈折することはできない。観測者は明暗の境界を観測することで β を求める。これをもとに式 (3.1) からサンプルの屈折率を計算することができる。

$$n = N \times \sin\beta \quad (3.1)$$

この原理をもとに測定を行なった。

3.2.2 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. アッペ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。

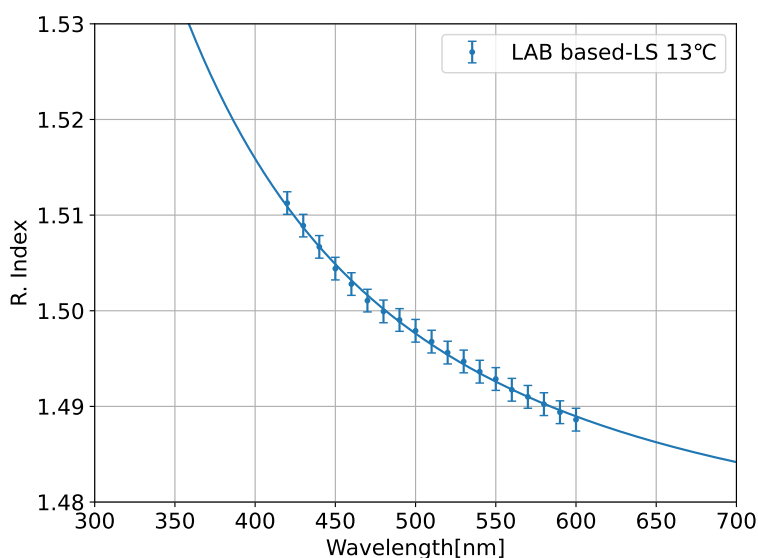


図 3.8 LAB based-LS の 13°C における屈折率

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する。

本研究において、屈折は測定者の目を使って測定するため可視光しか測定することができない。そのため測定波長範囲は 420 -600 nm である。また、測定については温度が 13°C になるように設定した。これは KamLAND 検出器内の液体シンチレータの温度が 13°C であるためだ。

しかし、液体シンチレータの発光波長を考えると可視光よりも短波長部分も重要である。このデータを補間するためにコーシーの拡散方程式 [39] より、式 (3.2) でフィットをすることで測定点以外で補完を行なった。測定の誤差に関しては、先行研究 [40] より 0.001 とした。

$$n(\lambda[\text{nm}]) = a + \frac{b}{\lambda^2} + \frac{c}{\lambda^4} \quad (3.2)$$

3.2.3 測定結果

測定結果を図 3.8 に、フィットのパラメータを表 3.1 に示す。

表 3.1 屈折率フィットのパラメータ

サンプル	a	b	c
LAB based-LS	1.473 ± 0.0021	5043 ± 1013	(3.008 ± 1.308) × 10 ⁸
N10-LS + Bis-MSB	1.416 ± 0.0060	4907 ± 2995	(2.426 ± 3.591) × 10 ⁸

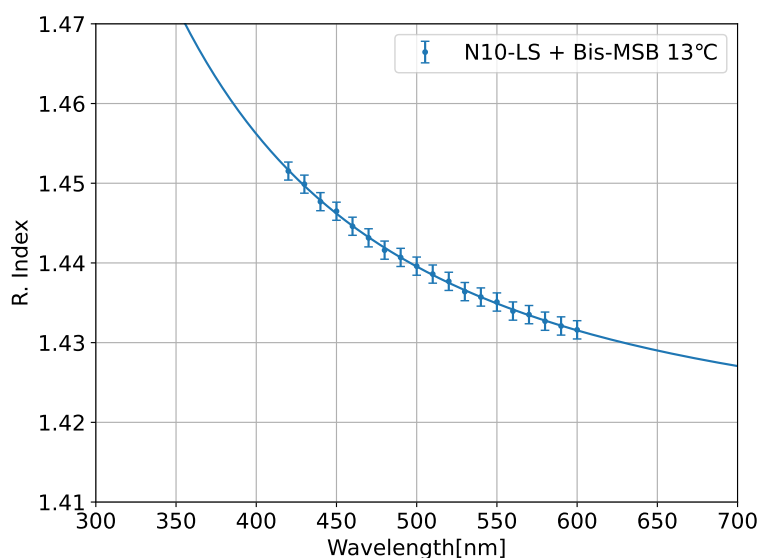


図 3.9 N10-LS + Bis-MSB の 13°C における屈折率

屈折率は密度に関係しており、密度が大きい方が屈折率も大きくなる。実際、LAB based-LS は密度が大きいため Xe-LS+Bis-MSB よりも屈折率が大きくなっていることがわかる。

3.3 $^{214}\text{Bi} - ^{214}\text{Po}$ 遅延同時計測による α 線発光量測定

液体シンチレータの発光過程で放射線エネルギーが光エネルギーに変わらず消えてしまう消光効果 (クエンチング効果) がある。このクエンチングには数種類あり、その中でも α 線は電離クエンチングの作用が大きい。

電離クエンチングとは、電離能 dE/dx が大きい粒子が液体シンチレータ内を通過する際、道筋に電離、励起密度の高いところができることで蛍光効率が下がる現象である [41]。

ここでは、 α 線のエネルギーに対して、観測上ではどれほどのエネルギーで観測されるか (visible energy) の測定を行った。

3.3.1 測定方法

本研究では、 $^{214}\text{Bi} - ^{214}\text{Po}$ 遅延同時計測を用いて α 線による発光を測定した。発光量測定を行う際、固体シンチレータに対しては線源を直接当てることができるが、 α 線源の形状を考慮すると、液体シンチレータに対しては線源が汚染される可能性があるため、線源と液体シンチレータを離して設置する必要がある。しかし α 線の飛程は短く、5 MeV の α 線は空気中で約 3 cm ほどしか飛ばない。そこで ^{222}Rn を液体シンチレータ中に溶かしこみ、その娘核である ^{214}Po の 7687 keV- α 線 (図 3.10) を用いて α 線に対する発光量を求める。

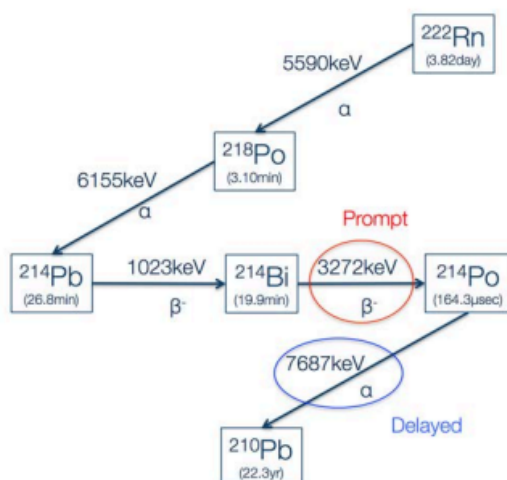
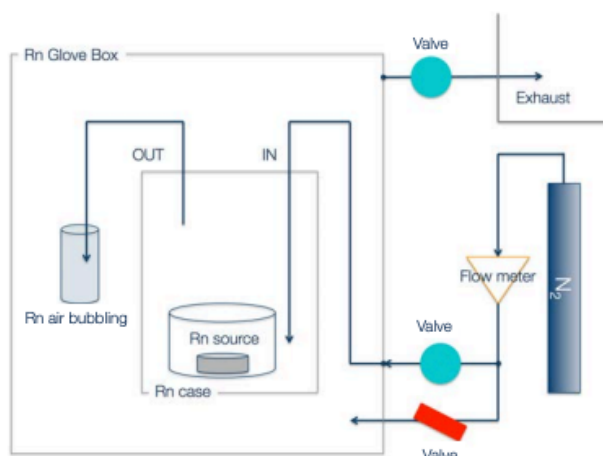
図 3.10 ^{222}Rn 崩壊系列 [42]

図 3.11 Rn バブリング装置概念図 [42]

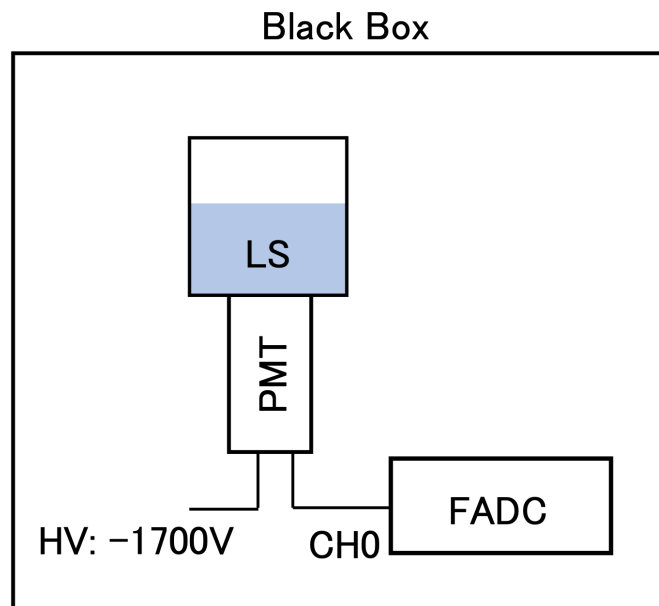
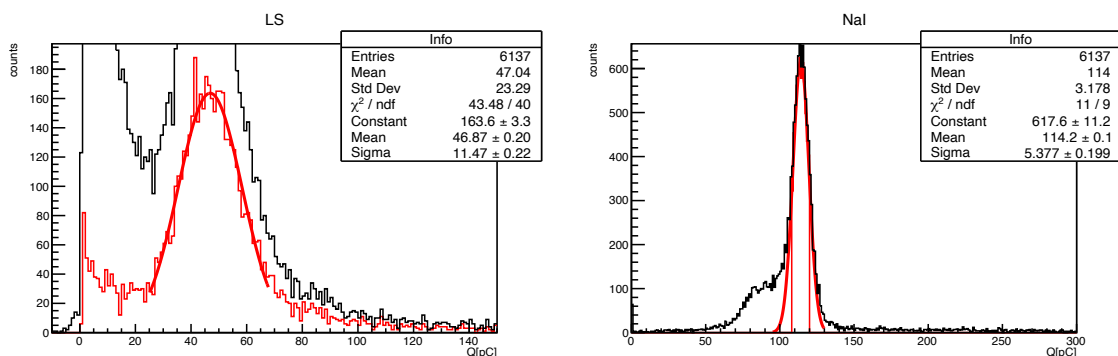
3.3.2 測定セットアップ

^{222}Rn バブリングは図 3.11 のような装置を用いた。

今回は測定に関して、PMT(H7195 : 浜松ホトニクス社製) と FADC(DT5751 : CAEN 社製) を用いた。測定概念図は図 3.12 に示す。

3.3.3 α 線発光量解析方法

$^{214}\text{Bi} - ^{214}\text{Po}$ 遅延同時計測を行うために、FADC のタイムスタンプを使用した。トリガーヒットした全てのイベントの中で、二つのイベントの時間差が $5 - 950 \mu\text{sec}$ となっているイベントのセットを抽出して、一つ目を先発信号 (Prompt: ^{214}Bi による β, γ 線)、二つ目を後発信号

図 3.12 α 線発光量測定概念図図 3.13 ^{137}Cs による発光量測定結果 (LAB based-LS)

(Delayed: ^{214}Po による α 線) とした。このとき、低エネルギー側は暗電流などによる偶発イベントとして計測されているため、後からカットをした。

エネルギーキャリブレーション

α 線発光量を測定し、Visible energy を算出するためにあらかじめエネルギーが既知の放射線源を使用してエネルギーと発光量のキャリブレーションを行った。今回は ^{137}Cs と ^{60}Co による後方散乱を使用した発光量測定を行った。この測定方法に関しては、付録 A に詳細を記載している。

^{137}Cs からは 662 keV、 ^{60}Co からは 1170 keV、1330 keV の γ 線が放出されている。今回はその γ 線による 170° 散乱として測定を行った。結果は、図 3.13, 3.14 と表 3.2 に示す。

これらの測定点で直線フィッティングを行うことで、キャリブレーション用の直線を算出した

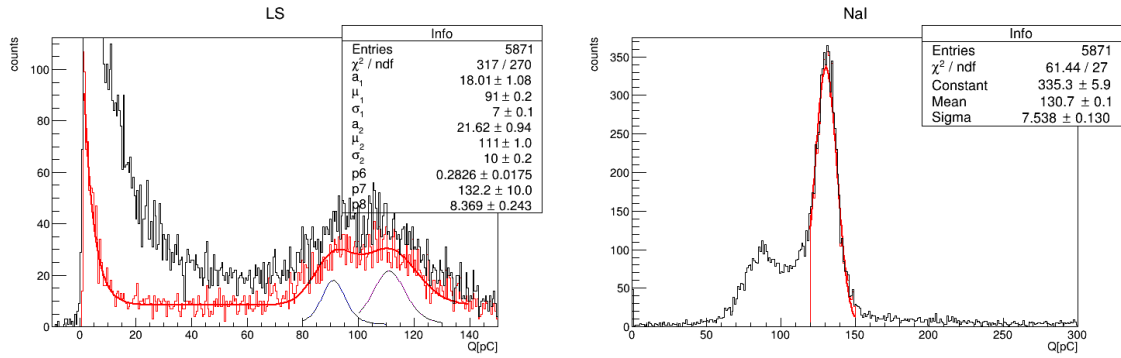
図 3.14 ^{60}Co による発光量測定結果 (LAB based-LS)

表 3.2 2つの放射線源による発光量測定 (LAB based-LS)

170° 散乱時の電子のエネルギー E_e [keV]	Light yield [pC]
476.6(^{137}Cs)	46.87
959(^{60}Co)	91
1114.3(^{60}Co)	111

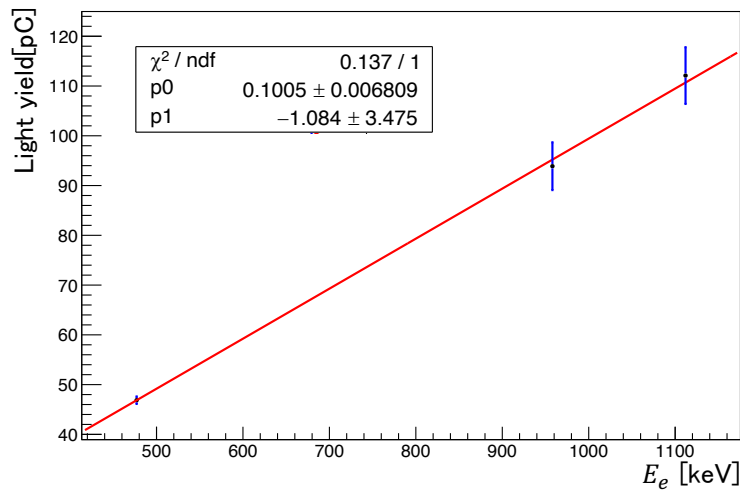


図 3.15 キャリブレーション結果 (LAB based-LS)

(図 3.15)。

次節で α 線による発光量を測定し、キャリブレーションをもとに Visible energy を算出する。

3.3.4 α 線発光量解析

図 3.12 のセットアップで測定行った結果を図 3.16 に示す。

^{214}Bi の β 崩壊の Q 値は 3272 keV となっている。したがって今回は先発信号のエネルギー

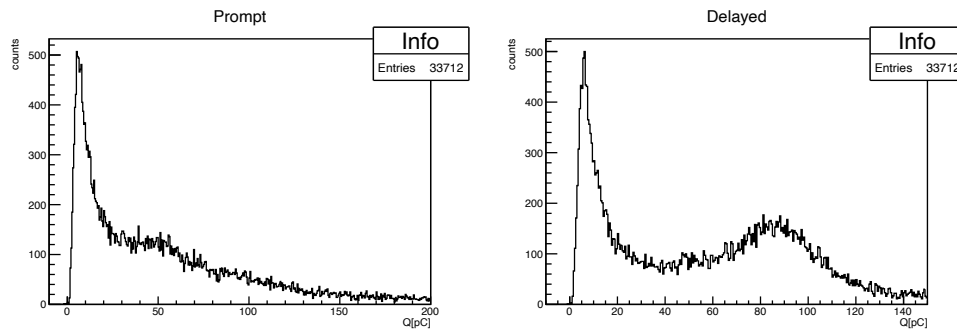


図 3.16 先発信号と後発信号のエネルギースペクトル

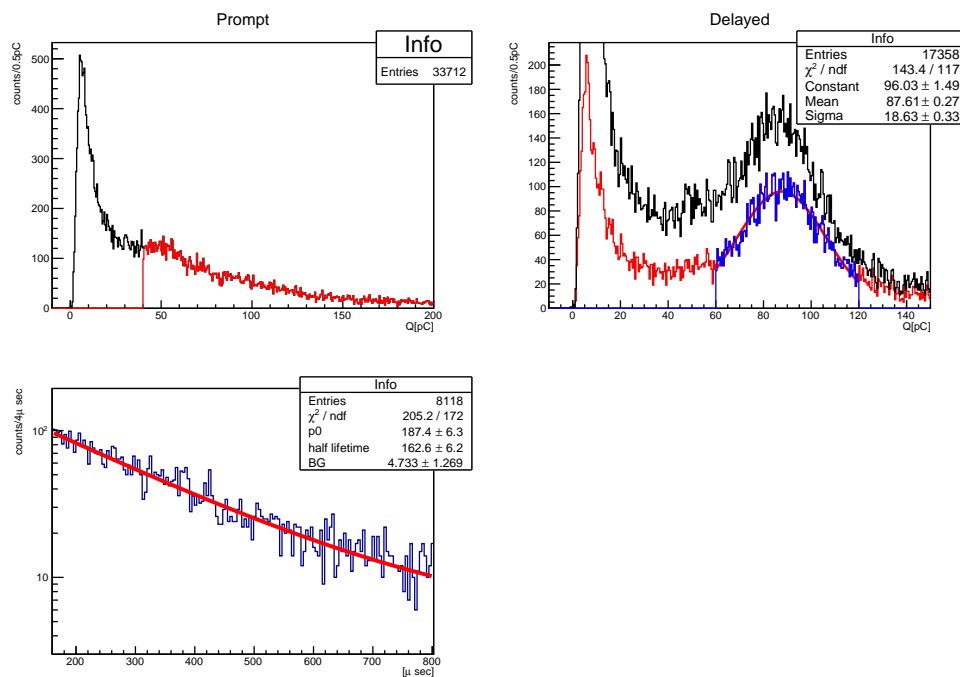


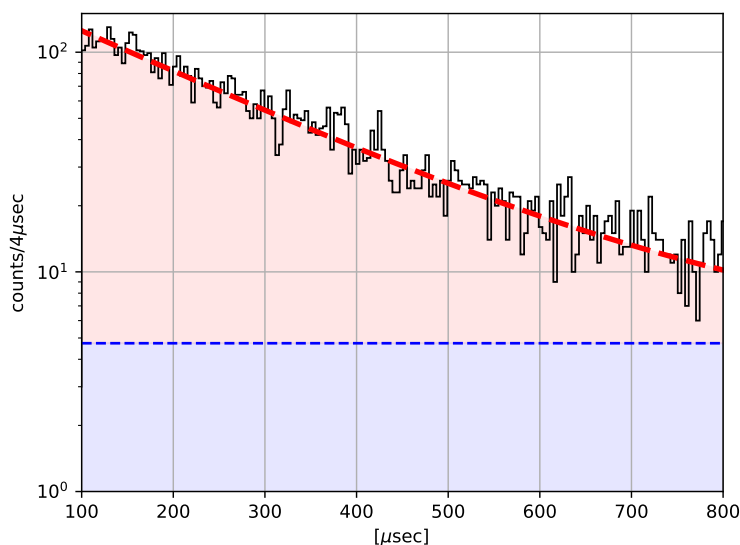
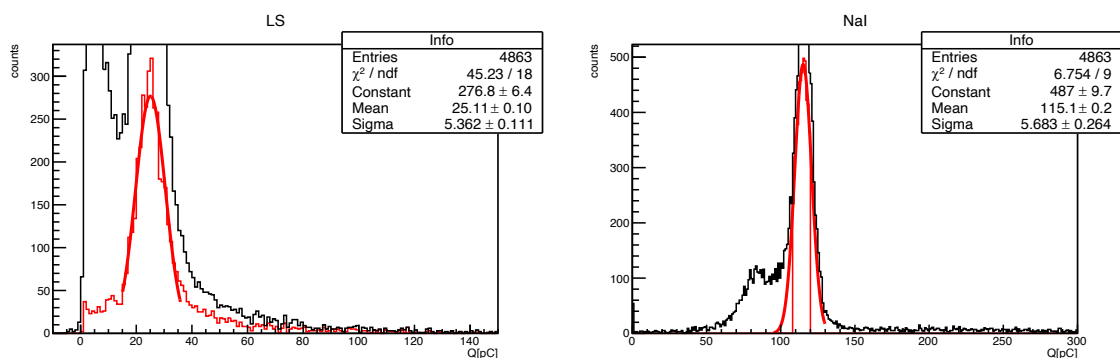
図 3.17 イベントカット後の先発信号と後発信号のエネルギースペクトル (LAB based-LS)

ペクトルにおいて小さなピーク位置手前のエネルギー以前はカットすることにした。ここでは、40 pC 以下をカットしたイベントを図 3.17 に示した。

先発信号で選んだ部分を赤色で示しており、そこに対応する後発信号イベントを赤色で示している。後発信号のピーク付近のイベントにおいて (青色) 先発信号と後発信号の時間差のタイムスペクトルを左下に示している。フィット結果の半減期は $162.6 \pm 6.2 \mu\text{s}$ となっており、 ^{214}Bi の半減期 $164.3 \mu\text{s}$ に一致している。

また、フィットした関数部分の面積から、BG 成分の面積を差し引いた面積の割合から実際の α 線発光イベントの割合を算出すると 91% が実際に注目しているイベントとなった (図 3.18)。

これらの測定により、 α 線発光量は 87.61 pC となり、キャリブレーション結果 3.15 と合わせると、LAB based-LS での ^{214}Po による α 線 (7687 keV) 発光の Visible energy は

図 3.18 α 線の発光イベントの割合 (LAB based-LS)図 3.19 ^{137}Cs による発光量測定結果 (N10-LS+Bis-MSB)

$$897.8 \pm 32.2 \text{ keV} \quad (3.3)$$

となった。誤差としては、ピーク位置のガウスフィットのエラーと発光量測定のエラー 1.6% が含まれている。この結果からクエンチングファクターは、

$$897.8 \pm 32.2 \text{ keV} \times \frac{1}{7687 \text{ keV}} = \frac{1}{8.77 \pm 0.31} \quad (3.4)$$

となった。

また、N10-LS+Bis-MSB においても同様の操作を行いクエンチングファクターを算出した。算出までのキャリブレーションやエネルギーカット図については図 3.19 - 図 3.23, 表 3.3 に示す。

この時、図 3.23 から α 線のイベントは 90% と見積もられた。

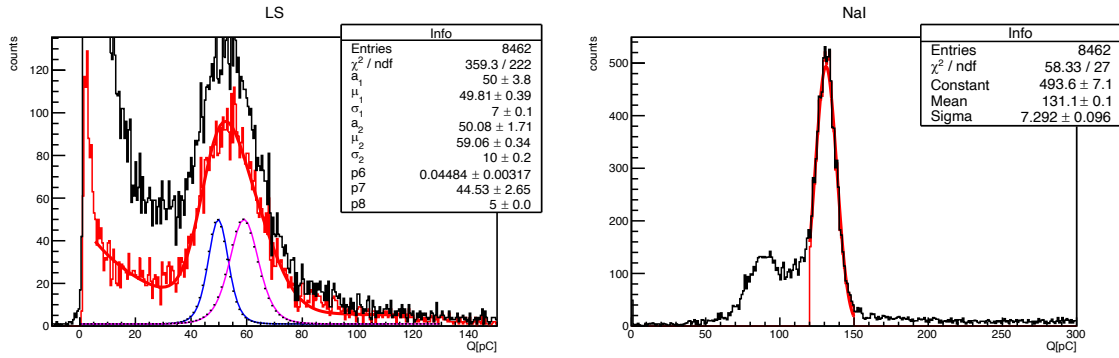


図 3.20 ^{60}Co による発光量測定結果 (N10-LS+Bis-MSB)

表 3.3 2つの放射線源による発光量測定 (N10-LS+Bis-MSB)

170° 散乱時の電子のエネルギー E_e [keV]	Light yield[pC]
476.6(^{137}Cs)	25.11
959(^{60}Co)	49.81
1114.3(^{60}Co)	59.06

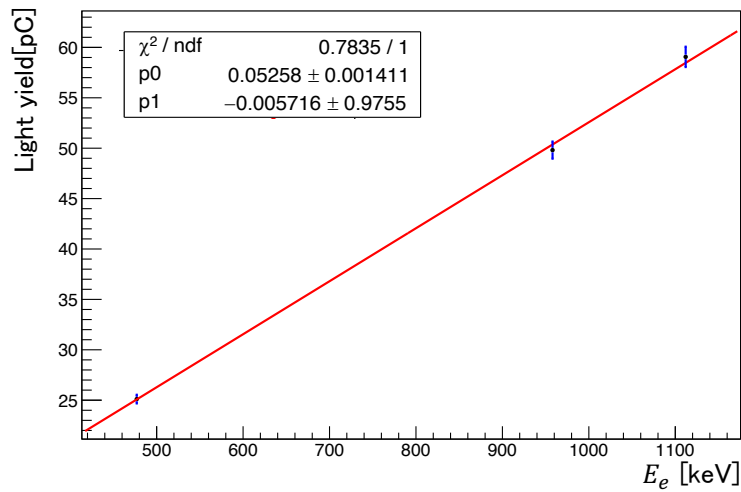


図 3.21 キャリブレーション結果 (N10-LS+Bis-MSB)

α 線による発光量は、32.32 pC となり、キャリブレーション結果から N10-LS+Bis-MSB での ^{214}Po による α 線 (7687 keV) 発光の Visible energy は

$$614.8 \pm 19.4 \text{ keV} \tag{3.5}$$

となり、これよりクエンチングファクターは、

$$614.8 \pm 19.4 \text{ keV} \times \frac{1}{7687 \text{ keV}} = \frac{1}{12.5 \pm 0.39} \tag{3.6}$$

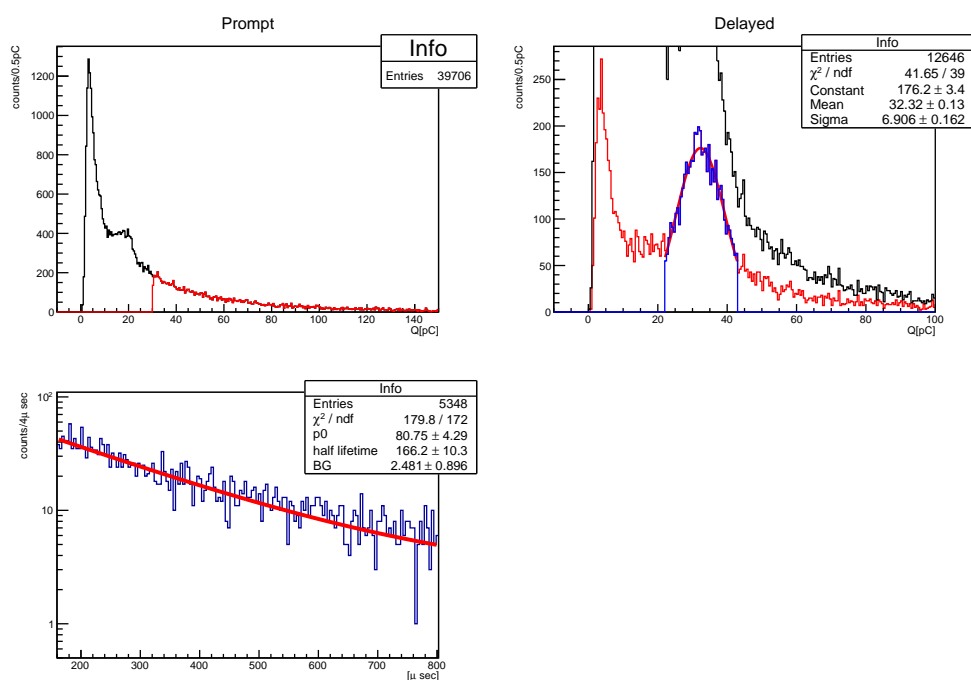


図 3.22 イベントカット後の先発信号と後発信号のエネルギースペクトル (N10-LS+Bis-MSB)。赤は先発信号のエネルギーでカットを行ったイベント。青は後発信号のピーク付近のイベント。

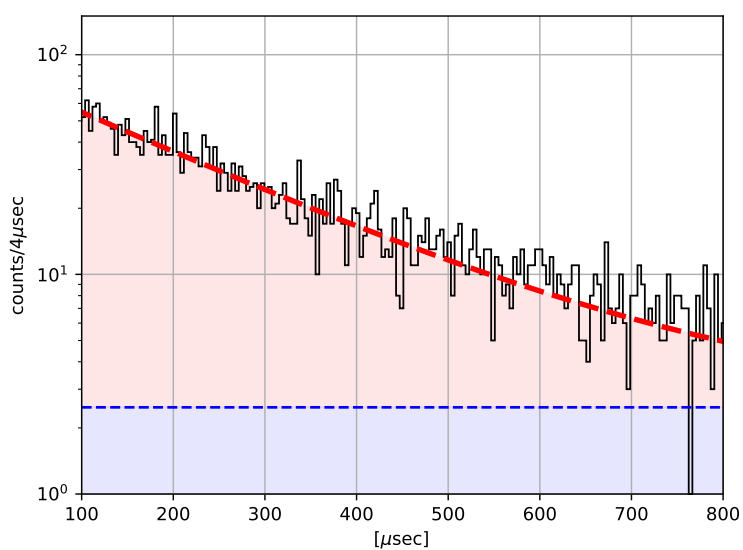


図 3.23 α 線の発光イベントの割合 (N10-LS+Bis-MSB)

表 3.4 α 線による発光のクエンチングファクター (^{214}Po による α 線 (7687 keV))

サンプル	クエンチングファクター
LAB based-LS	1/8.77
N10-LS+Bis-MSB	1/12.5

2 種類の LS においてクエンチングファクターは表 3.4 のようになった。現在使用されている KamLAND-LS では ^{214}Po による α 線 (7687 keV) 発光のクエンチングファクターは 1/13 程度とされている [43]。

この値と比べると LAB based-LS は α 線によるクエンチングが小さくなっていることがわかる。N10-LS+Bis-MSB は KamLAND-LS とほぼ同等の結果となっている。

第 4 章

Xe 含有液体シンチレータの発光量評価

4.1 研究方法

KamLAND2-Zen 実験で使用する液体シンチレータに要求される性能の一つとして、**大発光量**がある。

この要求の他に、液体シンチレータに $2\nu\beta\beta$ 崩壊核種である ^{136}Xe を溶解するのは 2 章で述べたとおりである。

液体シンチレータに ^{136}Xe のような原子量の大きい物質が入ると、消光効果 (クエンチング効果) が起こることが知られている。現段階では、新液体シンチレータにおいて Xe を溶解した際の発光量の変化などが測定されていない。

現在考えられている液体シンチレータの候補は 2 つある。一つは LAB をベースとした LAB based-LS である。LAB は大発光量・高透過率をもち、有力な候補である。

二つ目は、Xe-LS(組成は表 2.5) に Bis-MSB を加えたものである。これは現在 KamLAND-Zen 実験でインナーバルーンの中に導入されている液体シンチレータであり、再利用が可能である。実際、新たに LAB を大量に購入する場合莫大な費用がかかる。従って、費用の面から考えるとこちらの液体シンチレータの方も有力である。

本章では、新液体シンチレータに Xe を溶解した際のクエンチング効果やその効果に対する対策について述べる。

4.2 実験方法

4.2.1 発光量測定について

発光量測定は、 ^{137}Cs の γ 線によるコンプトン散乱の後方散乱と発光の同時計測によって行なった。

実際の測定においては、液体シンチレータの発光を 2 インチ PMT(浜松ホトニクス社製)、後方散乱した γ 線を NaI シンチレータで検出して、二つの信号の遅延同時計測をとることで測定した。データの取得には FADC, DT5751(CAEN 社製)1 ギガサンプリングを使用した (概念図 8.1)。

測定の誤差は、1.6% とした。測定の詳細については、付録 A に示している。

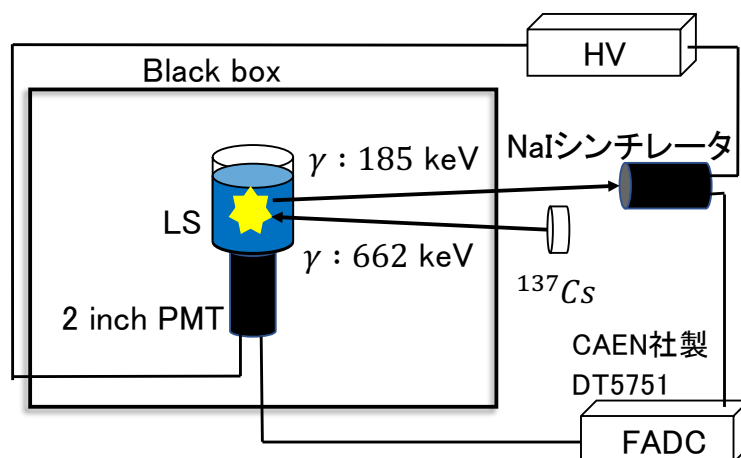


図 4.1 発光量測定概念図

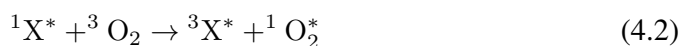
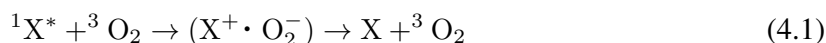
4.2.2 実験手順

発光量測定は以下のような手順で行なった。

1. フラスコと配管を接続して窒素バブリングを 550 ccm で 10 分行う
2. バルブを締めてフラスコから空気が漏れないようにして取り外す
3. フラスコの底面にオプティカルグリースを塗る
4. PMT との間に気泡などが入らないようにフラスコを PMT の上に設置する
5. 測定を 2 時間行う

窒素バブリング

液体シンチレータの発光において、消光効果 (クエンチング効果) があり、その中に酸素クエンチというものがある。空気中の酸素分子が液体シンチレータに含まれることでクエンチングが起こる。これは、溶媒などの励起状態が酸素分子によってクエンチされることで起きる (式 (4.1)-(4.3) [44])。



このクエンチングは不活性ガスを通すことで減少することがわかっている。本研究では窒素ガスを使用している。窒素によるバブリングは使用する液体シンチレータの体積の 15 倍程度が理想とされている。今回は 350 ml のサンプルを使用しており、550 ccm で 10 分窒素バブリングすることで 15 体積以上となるためこの時間とした。



図 4.2 セパラブルフラスコ (SHIBATA 社製)

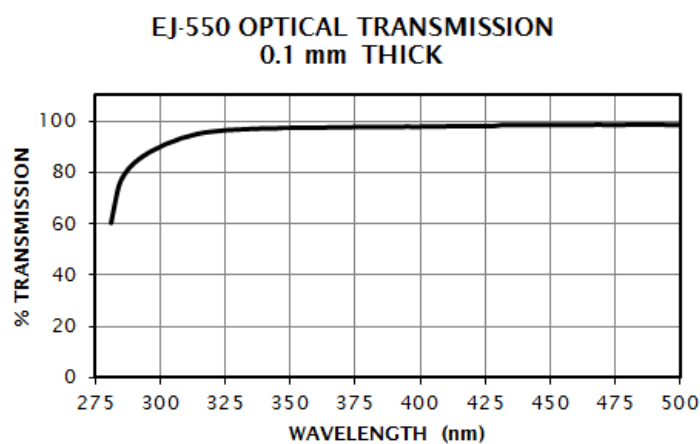


図 4.3 EJ550 の透過率 [45]

オプティカルグリース

測定に使用した容器は 500 ml のセパラブルフラスコ (SHIBATA 社製, 図 4.2) を使用しているが、底面に窪みがあり平ではない。PMT の上に設置した際に間に空気の層ができてしまう。そうすると測定がうまくできない場合がある。

そのため今回は、PMT とフラスコの間をオプティカルグリースで埋めた。今回使用したオプティカルグリースはシリコンのグリースであり光学実験などに用いられ、広範囲の波長領域において優れた透過性を持っている。本研究では、EJ-550 Optical Grade Silicone Grease(ELJEN TECHNOLOGY 社) を使用した。EJ-550 の透過率については、図 4.3 に示す。

4.2.3 Xe ガス溶解について

今回は、液体シンチレータの発光量を測定する過程で Xe を溶解した場合の測定も行なっている。そのため容器は耐圧性のあるガラスのフラスコを使用している。

Xe ガス導入の手順は以下の通りである (概念図 4.4)。

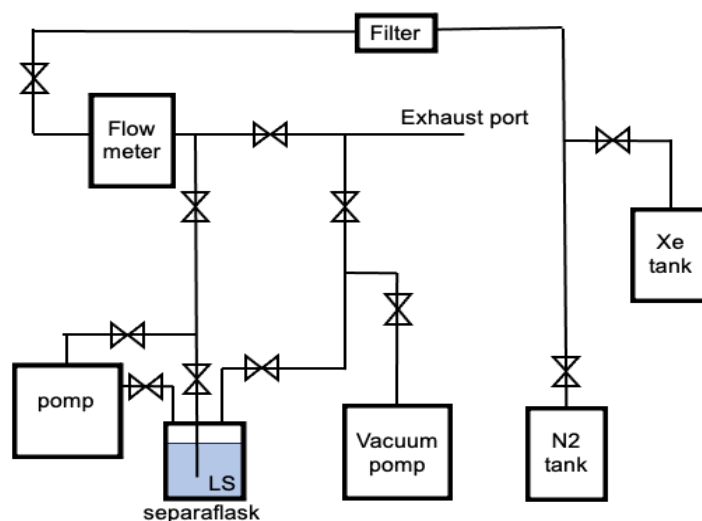


図 4.4 Xe ガス導入セットアップ



図 4.5 MODEL8500 マスフローコントローラ/メータ (コフロック社製)

1. 窒素バブリングを行う
2. フラスコ内を限界 (大気圧との差圧-0.88 MPa) まで真空引きする
3. Xe ガスを徐々に投入していく
4. マスフローメーターで溶解量を確認して測定に移る

今回は、徐々に Xe の量を増やして測定をこなしている。その時の最終点は Xe が飽和状態になるところまで溶解した。本研究の中での飽和状態とはフラスコ内の圧力が大気圧と同等 (0 Pa) となり 5 分間変化がない場合を飽和状態とした。今後も飽和状態というときは、この状態を指すこととする。

フラスコ内の圧力は差圧計を使用しており、Xe の溶解量は MODEL8500 マスフローコントローラ/メータ (コフロック社製, 図 4.5) を使用した。真空引きに関しては、ポンプの性能が完全に真空にはできないため、限界値を真空として真空引きを行った。

4.3 Xe含有液体シンチレータの発光量測定

本説では、Xeを溶解した際にどれほど発光量が増加するかの測定について述べる。

4.3.1 試料概要

今回は4種類のサンプルを使用した。

1. KamLAND-LS
2. N10-LS
3. N10-LS+Bis-MSB
4. LAB based-LS

KamLAND-LSの組成は表2.1の通りであり、基準となるため測定を行なった。N10-LSに関しては、先行研究との比較のために測定を行い、そこにBis-MSBを加えたもの(KamLAND2-Zen実験の候補のひとつ)も測定を行なった。LAB based-LSがKamLAND2-Zen実験の候補となる予定のLABを使ったサンプルである。表2.5にあるXe-LSの組成はXeが含有された場合の組成を示しているが、今後はXeLSと呼ぶと語弊が生じるためN10-LSと呼ぶこととする。

サンプルの量について、各サンプル350ml作成している。

表4.1 N10-LSの構成要素

物質名	分子式	密度	比率
デカン (N-10)	C ₁₀ H ₂₂	0.735 g/cm ³	82.4%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C ₉ H ₁₂	0.875 g/cm ³	17.6%
2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	C ₁₅ H ₁₁ NO	—	2.7 g/L
N10-LS	-	0.748 g/cm ³	-

表4.2 N10-LS + Bis-MSBの構成要素

物質名	分子式	密度	比率
デカン (N-10)	C ₁₀ H ₂₂	0.735 g/cm ³	82.4%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C ₉ H ₁₂	0.875 g/cm ³	17.6%
2,5-ジフェニルオキサゾール (PPO)	C ₁₅ H ₁₁ NO	—	2.7 g/L
1,4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン (Bis-MSB)	C ₂₄ H ₂₂	—	15.0 mg/L
Xe-LS+Bis-MSB(w/o Xe)	-	0.748 g/cm ³	-

表 4.3 LAB based-LS の構成要素

物質名	分子式	密度	比率
リニアアルキルベンゼン (LAB)	$C_{21}H_{36}$	0.85 g/cm ³	80%
1,2,4-トリメチルベンゼン (PC)	C_9H_{12}	0.875 g/cm ³	20%
2,5-ジフェニルオキサゾール (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)	$C_{24}H_{22}$	—	15.0 mg/L
LAB based-LS	-	0.873 g/cm ³	-

4.3.2 結果と考察

発光量の変化とフィットをプロットしたものは、図 4.6 に、発行量についてまとめたものは表 4.4 に示す。フィットに関数は $A\exp(-Bx) + C$ としてフィットをおこなっている。前述の通り、KamLAND-LS(w/o Xe) を基準として考え、発光量を 1 として表示している。

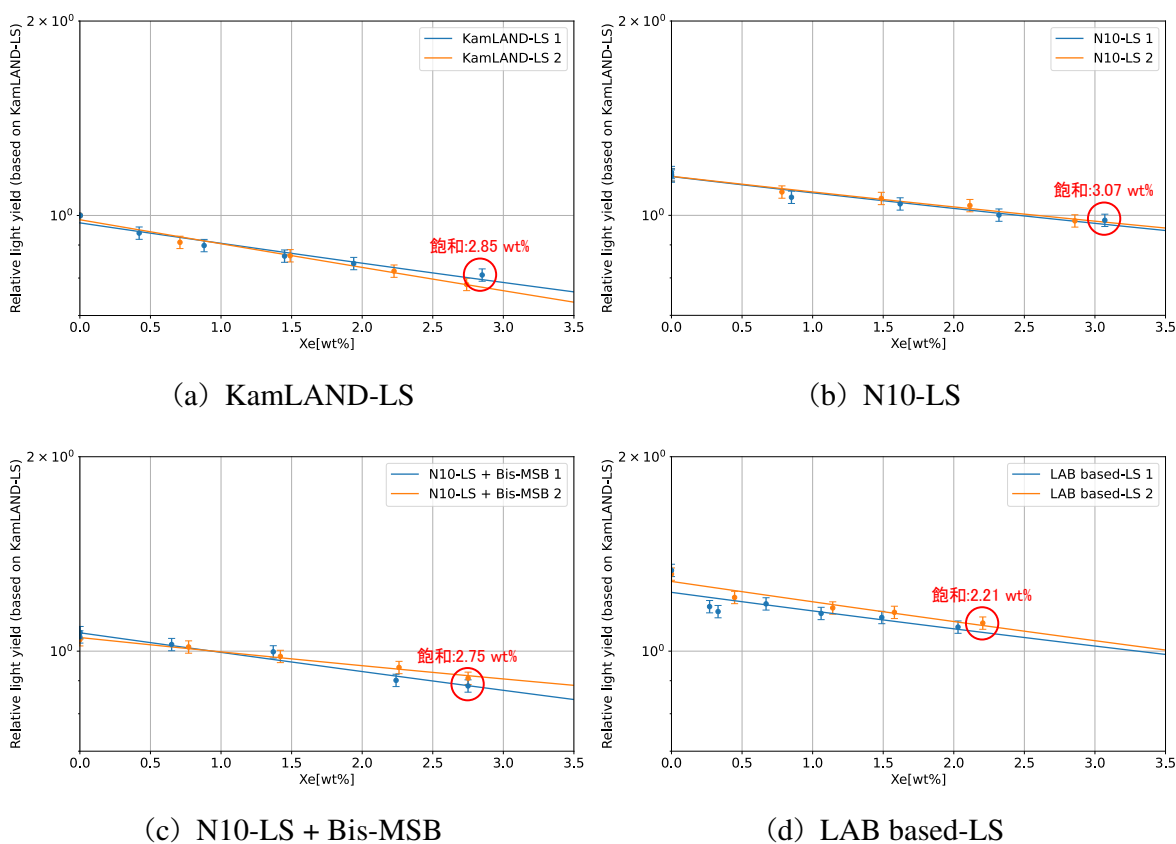


図 4.6 Xe 含有液体シンチレータの発光量変化

Xe 溶解後の発光量を見てみると、13.5-19% の減少が見られる。N10-LS については先行研

表 4.4 Xe含有液体シンチレータの発光量変化 (KamLAND-LS=1)。w/ Xe は Xe を飽和状態まで溶解した時の値を示している。

サンプル	w/o Xe	w/ Xe	Xe[wt%](飽和状態)	発光量変化量
KamLAND-LS	1.00	0.81	2.85	-19.0%
N10-LS	1.15	0.98	3.07	-14.8%
N10-LS + Bis-MSB	1.04	0.90	2.75	-13.5%
LAB based-LS	1.32	1.11	2.21	-15.9%

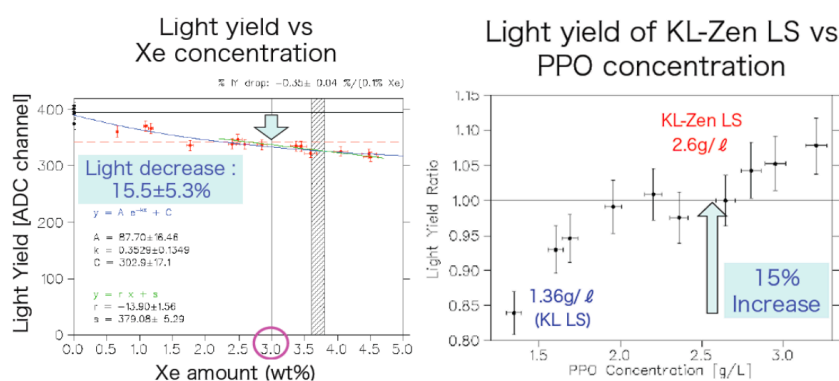


図 4.7 Xe 溶解に伴う発光量変化 (左)、PPO と発光量の関係 (右) [46]

究 [46] において測定が行われている (図 4.7)。これを見ても、KamLAND-LS において Xe を 3wt% 溶解したときの発光量減少は $15.5 \pm 5.3\%$ となっており (図 4.7 左)、誤差の範囲内で一致する。また、図 4.7 右では PPO を Xe-LS と同等まで増やした時の発光量変化が示されており、15% 増加していることがわかる。本実験でも Xe-LS は KamLAND-LS の 15% 増加になっているため再現している。

Bis-MSB を加えたものではさらに発光量は低く、Xe 溶解時では KamLAND-LS 比で 0.9 まで下がっている。LAB based-LS においても Xe 溶解時は KamLAND-LS 比で 1.11 となるため大幅な光量増加には至っていない。

従って、この組成以外に PPO や Bis-MSB の量を変化させることで Xe によるクエンチングを抑えることができないか測定して確かめる必要があると考えた。また、測定過程における問題点の改善をしたため、4.4, 4.5 節で改善内容とその後の測定について述べる

4.4 発光量測定におけるブラックシートの導入

これ以降の測定については、フラスコ内に PET 製で黒色のシート (以降ブラックシートと呼ぶ) を入れて測定を行うことにする。本節では、その背景やブラックシートを入れることによる変化について述べる。

4.4.1 背景

ブラックシートを導入するに至った理由として、一つにセットアップの変更がある。

これまでのさまざまな先行研究において、測定の際にはガラスのバイアル (150 ml) を使用していた。しかし、今回は Xe を溶解するにあたってセパラブルフラスコを使用している。また、バイアルで測定する際に使用していた遮光用のパイプの内側側面が光を反射するような材質で作成されていた (概念図 4.8)。そのため、発光した光を検出する際、反射光も含めて見ていたことになる。

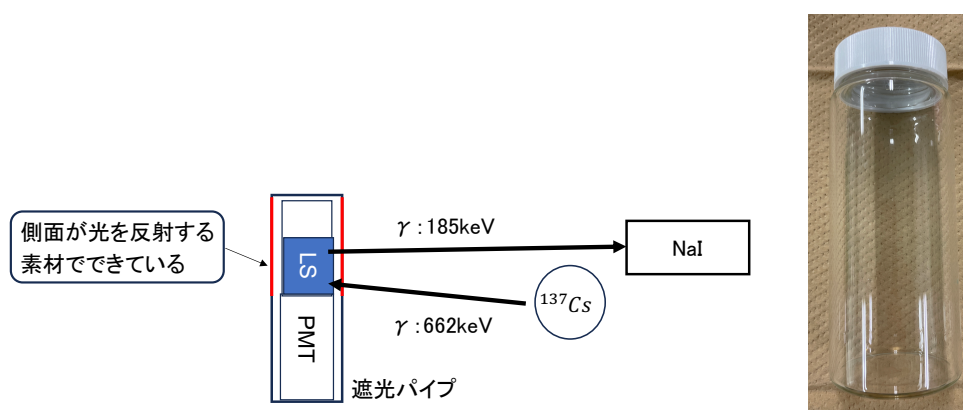


図 4.8 以前の発光量測定セットアップ。左図：発光量測定概念図、右図：使用していたバイアル

現在のセットアップ (図 8.1) では、周辺は反射する素材はなく、考えうるのはガラス面などでの反射である。このような反射を無くして、なるべく直接光のみを検出するためにフラスコの中にブラックシートを導入することを検討した。

4.4.2 実験方法

ブラックシートの耐性

ブラックシートを導入するにあたって、初めにブラックシートの液体シンチレータ耐性を調べる必要がある。調査対象としては、PC(プソイドクメン)を使用した。プソイドクメンが使用する液体の中で一番腐食性が高く、プソイドクメンに耐性があればその他液体への耐性も十分にあるとした。

調べた内容としては、透過率である。液体に物質が溶け出したりした場合に一番影響を受けるのは透過率である。

2023年7月20日PCの透過率 ($T_{7/20}$) を測定した後、ブラックシートをPC内に浸した。その後2023年10月7日 ($T_{10/7}$) に浸しておいたPCの透過率を測定して差 ($dT=T_{10/7}-T_{7/20}$) を比較した (図 4.9)。

結果を見てみると、 $T_{10/7}-T_{7/20}$ が ± 0.1 以内に収まっていることがわかり、透過率には大きな影響がないことが言える。測定時間は2時間であるため、その間液体シンチレータにブラック

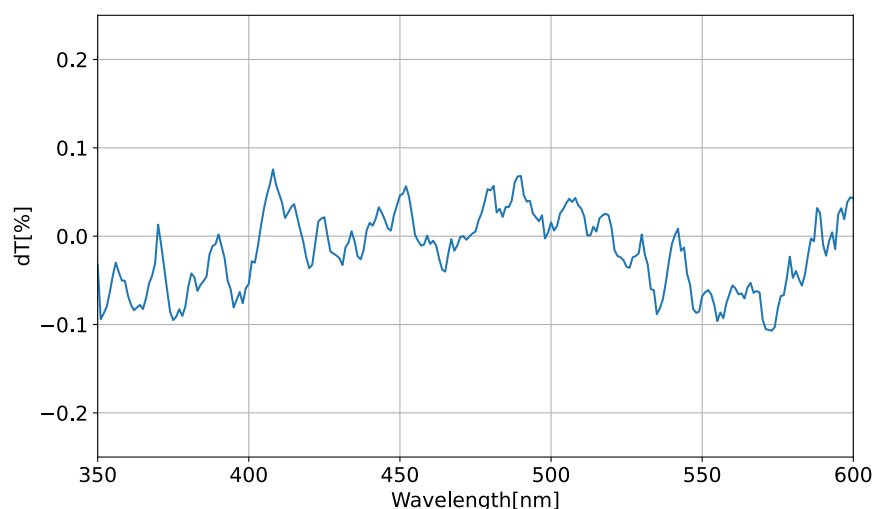


図 4.9 ブラックシートの耐性チェック (透過率)。 $T_{10/7}-T_{7/20}$ が ± 0.1 以内に収まっていることがわかる

シートが浸っていても影響がないとわかった。

4.4.3 結果

今回は LAB based-LS においてブラックシートがある場合とない場合の発光量の比較を行った。結果は表 4.5 の通りである。

表 4.5 ブラックシートによる発光量の変化

発光量 (ガウシアン Mean 値)	
w/o シート	220.21
w/ シート	58.67

結果を見てみると、ブラックシートを導入することで発光量が約 73% 減少していることがわかり、検出の大半が反射光を見ていることがわかった。KamLAND において検出する光は直接光であるため、実際の環境を考えるとブラックシートを導入してできる限り反射光を減らす方が良いと考えた。

4.3 節で測定したデータの評価については、Xe による発光量の減少についてのみ考える。測定系が変わったとしても、Xe による減少については不変の特性であるとし、違う組成同士の液体シンチレータの発光量の比較には用いず Xe による発光量の減少量のみの評価に使用する。

4.5 節での測定は、図 4.10 のように全てブラックシートを導入して測定することにする。



図 4.10 ブラックシートを導入したフラスコ

4.5 Xe 含有液体シンチレータの PPO・Bis-MSB 量変化における発光量の変化

ここでは、4.3 節の測定をうけて Xe によるクエンチングを減少させる液体シンチレータの最適な組み合わせは他にあるのかどうかを調べるための測定を行なった。

4.5.1 試料概要

サンプルは大きく二種類に分けて測定を行った。

- LAB based-LS
- N10-LS + Bis-MSB

この二つが KamLAND2-Zen 実験の候補になる。Xe ガスは非常に高価であり量が限られているため、今回はこの二つに絞って PPO と Bis-MSB の量を変えて測定を行った。

4.5.2 実験方法

各サンプルにつき測定点は、w/o Xe(Xe あり)・w/ Xe(Xe なし)の二点を測定した。w/o Xe の場合は手順 4.2.2 に沿って測定を行い、w/ Xe の場合には手順 4.2.3 に沿って測定を行った。

4.5.3 LAB based-LS における PPO 量調整

まず初めに、LAB based-LS について PPO を 2.0, 2.5, 3.9, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0, 10.0 g/L に変更して測定を行った。PPO が 10.0 g/L の場合はあまり一般的でなく非常に多いが、一つの指標として測定した。

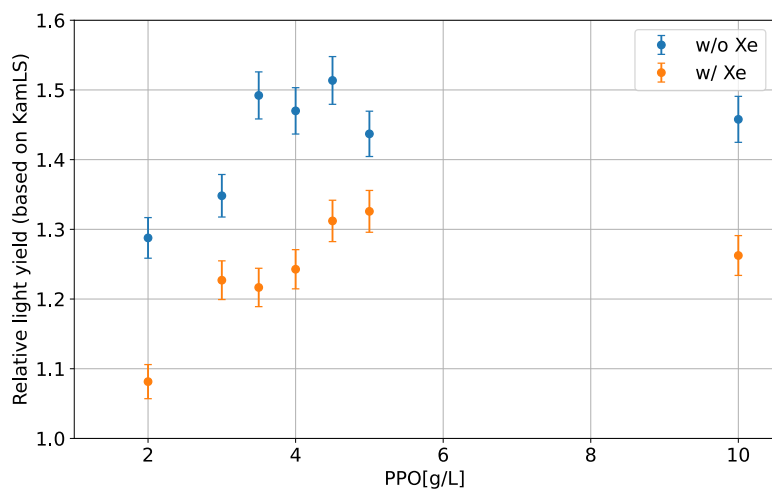


図 4.11 LAB based-LS の PPO 量調整による発光量

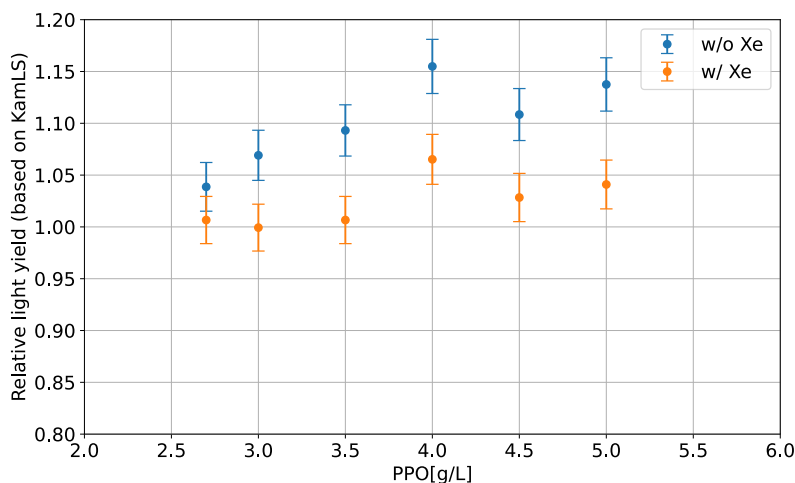


図 4.12 N10-LS+Bis-MSB の PPO 量調整による発光量

測定結果を図 4.11 に示す。

結果をみると、Xe のあるなしで発光量の変化に違いがある。Xe がいない場合では発光量は PPO3.5 g/L 以降大きな変化はなく横ばいになっているように見える。しかし、Xe を導入した際は PPO4.5 g/L 付近まで発光量が増加しており 5.0 g/L では KamLAND-LS 比で 1.33 と今までで最も良い結果を示している。それ以降は横ばいになることが予想され、10.0 g/L まで増やしたとしても発光量の増加は見られなかった。

後に述べるが、PPO を増加させるにも膨大な費用を要する。したがって、PPO の増加量もなるべく抑えたいとなると発光量だけ見ると 4.0-4.5 g/L 付近が限度と考えられる。

4.5.4 N10-LS+Bis-MSB における PPO 量調整

N10-LS+Bis-MSB についても PPO の量を調整して測定を行った (図 4.12)。

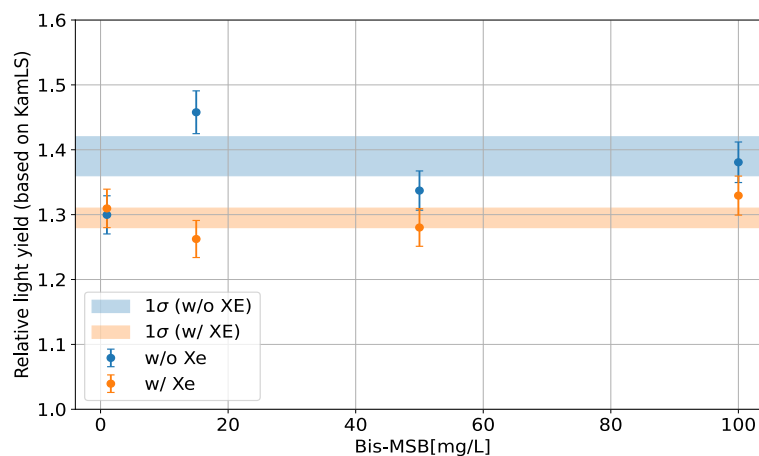


図 4.13 LAB based-LS の Bis-MSB 量調整による発光量

N10 を用いた液体シンチレータにおいても PPO の増加させることで発光量の改善が見られる。4.0 g/L まで増やすことで Xe 含有時で KamLAND-LS 比で 1.07 程度になる。LAB based-LS と同様 4.0 g/L が増量の限度と考えられる。

4.5.5 LAB based-LS における Bis-MSB 量調整

Bis-MSB に関しては LAB based-LS について増加による発光量の変化測定した。今回は Bis-MSB の効果は溶液かかわらず同様として測定を行った (図 4.13)。

結果を見てみると、Xe 含有時には発光量の大きな変化は見られなかった。測定点の平均値から 1σ のバンドを示しているが、Xe 含有時は全ての点が誤差を考えた場合にバンド内にある。本研究においては、波長変換剤である Bis-MSB は波長変換のみの役割を持ち発光量への影響はほぼないとした。したがって、波長変換がある程度なされる (本研究では 15.0 mg/L) 量以上の増加は必要ないとした。

4.5.6 Bis-MSB・PPO 量調整による費用の考慮

Bis-MSB の導入、および発光量増加のための PPO を追加をする際には費用も考慮する必要がある。今回液体シンチレータは 1 kt で、KamLAND 検出器の液体シンチレータタンクを半径 6.5 m、その中の Xe 含有液体シンチレータを導入しているミニバルーンの半径は 2.0 m として概算をした。まず、各試料の単価は表 4.6 に示す。

今回は、PPO を 1.0 g/L 分追加する場合と Bis-MSB を新たに 15 mg/L 追加する場合をミニバルーン内のみ、バルーン全体という 2 パターンについて概算を行った。

表 4.6 PPO と Bis-MSB の価格

試料	価格 [円/kg]
PPO	98,040
Bis-MSB	1,500,000

参考: 関東化学

表 4.7 PPO と Bis-MSB を追加する際の費用

試料	ミニバルーン内のみ	バルーン全体
PPO(1.0 g/L 増)	22,000,000	120,000,000
Bis-MSB(15.0 mg/L 追加)	5,000,000	25,000,000

4.6 考察とまとめ

Xe含有液体シンチレータについて、Xeを溶解することによるクエンチングは最大で20%程度にまで及ぶ。このクエンチングへの対策としてPPOの増加が有効であることがわかった。実際Xe含有液体シンチレータにおいては、PPOを4.0-5.0 g/L程度まで増加させると発光量の改善が見られる。これは、第一発光溶質であるPPOが増えることで励起された電子が、Xeによるクエンチが起きる前に発光過程に関与するようになる割合が増えることが原因だと考えられる。またXeによる発光過程への寄与の考察は5章で述べる

Bis-MSBに関しては、波長変換剤の役割を持っており、先行研究の過程ではBis-MSBを増やすことによる発光量の増加が見られた。本研究では、ブラックシートを導入することにより直接光のみを測定することでBis-MSBによる発光量の変化はないと結論づけた。

現在のミニバルーン内に導入しているXeLSにはPPOを2.7 g/L、新液体シンチレータの候補であるLAB based-LSにおいてはPPOを2.0 g/Lとなっている。ここにBis-MSB15.0 mg/L、PPOを4.0-5.0 g/L程度まで増加させることを考えると、ミニバルーン内だけで70,000,000円程度増えることになり、バルーン全体にBis-MSBを導入した場合はさらに高額になってしまう。したがって、PPOの増加は最大でも1.0 g/L程度に抑えるのが現実的であると考えられる。

また、7章で詳細を述べるが、ミニバルーン内だけにBis-MSBを導入した際発光波長が長波長になり、ミニバルーンの外のKamLAND-LSでの透過率が非常に良くなる。これによりミニバルーン内での発光は37%増加して検出される。

第 5 章

Xe 含有液体シンチレータの発光時定数

液体シンチレータの発光には、速い成分と遅い成分がある。速い成分はスピン一重項 (singlet) の状態 S_0 から電子が励起され $S_1 - S_3$ に励起された後 S_1 の最低準位 S_{10} から脱励起することによる発光である。遅い成分とは、 S_{10} からそのまま S_0 に脱励起するのではなく、スピン三重項 (Triplet) T_1 への無輻射遷移をし、 S_{10} へ遷移して最終的に S_0 に脱励起することで発光する成分である。遅い発光は、スペクトルは速い成分と同じであるが、過程の長さから減衰時間が長く (一般には数十から数百 ns) なる [47]。KamLAND の事象再構成では、PMT に光が到達する時間差を主に用いている。また、一般的に発光の速い成分と遅い成分の比を用いて粒子識別を行うこともできるため、発光時定数は重要なパラメータである。

本研究では、液体シンチレータに Xe を溶解した時の発光時定数の変化を測定し、結果に対して考察をする。

5.1 研究方法

本研究では、二つの PMT を使用して発光時定数の測定を行なった。一つは液体シンチレータを上セットする PMT(Start) でありここでは LS の発光をそのまま検出する。二つ目は、LS が光った時に 1 フォトンを検出するための PMT(Stop) である。Stop 側の PMT に関しては 1 フォトン以上のイベントはできるだけ見たくないので、カバーをつけて光の入射面を小さくしている (直径 5 mm 程度)。二つ目の PMT に関しては、暗電流による発光イベントが少ないもの (200 Hz) を使用した。また、データ取得には FADC,DT5751(CAEN 社製) の 1 ギガサンプルを使用した。放射線源は ^{60}Co を使用している (セットアップは図 5.1)。

原理としては、Start 側で LS の大発光を検出し、その発光により Stop 側に入る 1 フォトンの発光を検出する。その二つの信号の時間差を見ることで、1 フォトンの発光の広がりを見るという方法である。また、1 フォトンを観測する際に 1 フォトン側の PMT での計数率は、ポアソン分布から 1 p.e. が支配的になるよう、1 -2% となる入射面と PMT の距離を設定している。詳細は付録 C に記載している。

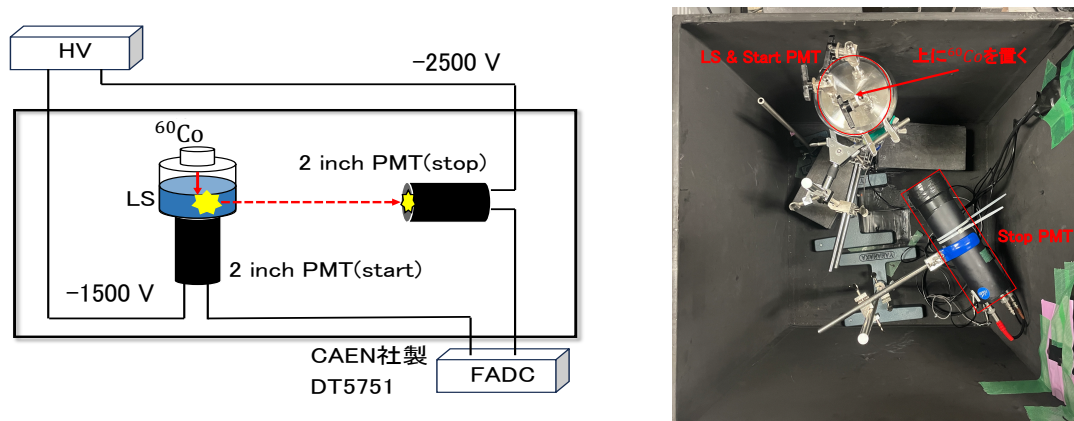


図 5.1 左図: 発光時定数測定の大略図、右図: 実際の測定セットアップ

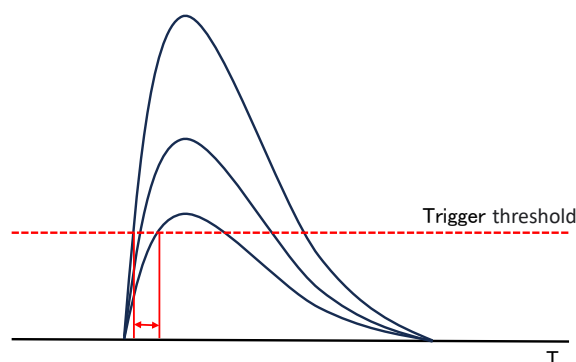


図 5.2 Slewing 効果。波高値が大きい方が、トリガーヒット時間が早く、小さい方がおそくなる。

5.1.1 解析について

TQ 補正

解析に際して、TQ 補正をというものをする必要があるのである。Stop 側では 1 p.e. を見れば良いためチャージの範囲は指定されている。しかし、Start 側の PMT においてはチャージの範囲に幅があり、その場合にはチャージの大きさでトリガーにかかる時間が変わってしまう (Slewing 効果、概念図 5.2)。チャージが大きいほど信号の波高値は高くなり、トリガーにかかる時間は早くなる一方で、チャージが小さいほど波高値は低くなり、トリガーにかかる時間は遅くなる。これによって結果に差が出てしまう。

測定では、Start 側と Stop 側のトリガーヒットの時間差 ($dT = T_{\text{Stop}} - T_{\text{Start}}$) を取ることで発光の広がりを見ているが、TQ 補正はこれを Start 側チャージによって分割して平均値をとり、X 軸チャージ: y 軸 dT のグラフを式 (5.1) でフィットした後 (dT -y) をすることで真の時間差を求めている (解析例 5.3)。

$$y = A(\log_{10}(Q))^2 + B\log_{10}(Q) + C \quad (5.1)$$

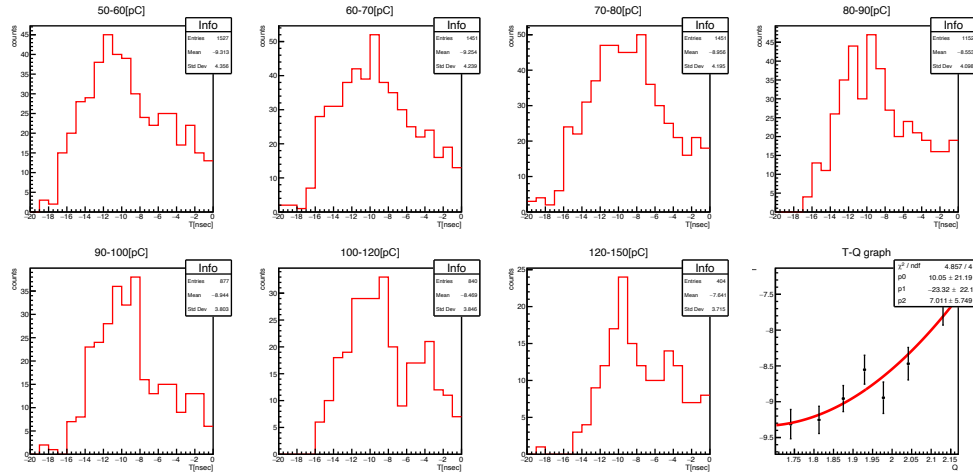


図 5.3 TQ 補正の例。Start 側のチャージ分布を作成し、値ごとに分けて $T_{\text{Stop}} - T_{\text{Start}}$ を計算し平均値をプロットしてフィットしている。

本研究では、各測定において TQ 補正を行っている。

フィッティング

$T_{\text{Stop}} - T_{\text{Start}}$ をタイムスペクトルとしてヒストグラムにすることで発光時定数を評価する。評価するにあたって、タイムスペクトルを関数でフィッティングする必要がある。

今回フィッティングの関数として、Exponential modified Gaussian 関数を使用した。この関数はガウシアンを \exp の指数関数でたたみ込んだものである。

$$f(x; \mu, \sigma, \lambda) = \frac{\lambda}{2} e^{\frac{\lambda}{2}(2\mu + \lambda\sigma^2 - 2x)} \operatorname{erfc}\left(\frac{\mu + \lambda\sigma^2 - x}{\sqrt{2}\sigma}\right) \quad (5.2)$$

ここで、 μ はガウシアンを中心、 σ はガウシアの広がり、PMT の T.T.S に依存する、 λ は指数関数の減衰パラメータであり $1/\lambda = \tau$ となり τ が発光時定数である。erfc については、誤差関数を $\operatorname{erf}(x)$ とした時

$$\operatorname{erfc}(x) = 1 - \operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} e^{-t^2} dt \quad (5.3)$$

と表され、相補誤差関数と呼ばれる。

式 (5.2) でフィッティングを行う際には関数に高さのパラメータ A をかけ、ノイズなどのバックグラウンド分の定数パラメータ B を加えたものでフィットを行う。また、発光の成分は早い成分、遅い成分と分かれているため、式 (5.2) を線型結合した以下の関数

$$T(t) = \sum_{i=1}^2 A_i \frac{\lambda_i}{2} e^{\frac{\lambda_i}{2}(2\mu + \lambda_i\sigma^2 - 2t)} \operatorname{erfc}\left(\frac{\mu + \lambda_i\sigma^2 - t}{\sqrt{2}\sigma}\right) + B \quad (5.4)$$

でフィットを行った。理想系を考えると PMT の効果が 0 であるため、発光の立ち上がり時間 μ

とガウシアン(注)の広がり σ が 0 の極限となる、この時 $\text{erfc}(-\infty) \rightarrow 2$ であり、 $1/\lambda_i = \tau_i$ であることを考慮して波形の成分を考えると、

$$T(t) = \sum_{i=1}^2 \frac{A_i}{\tau_i} e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (5.5)$$

となる。

5.2 液体シンチレータの発光時定数測定

はじめに、Xe を導入する前の液体シンチレータにおいて発光時定数の測定を行った。

5.2.1 測定試料

サンプルの容器としては、発光量測定と同様セパラブルフラスコ (図 4.2) に 350 ml のサンプルを入れて測定している。

使用したサンプルは大きく 2 グループで合計 6 サンプルある。1 つは LAB based-LS (表 4.3)、2 つ目は N10-LS+Bis-MSB (表 4.2) である。

このサンプルにおいても PPO の量を

- LAB based-LS : PPO 2.0、3.0、4.0 g/L
- N10-LS+Bis-MSB : PPO 2.7、3.0、4.0 g/L

に変更してそれぞれ測定を行なった。

5.2.2 測定方法

1. 窒素バブリングを 550 ccm で 10 分行う
2. フラスコ底面にオプティカルグリースを塗り StartPMT 上に設置する
3. 電圧は StartPMT : -1450 V、StopPMT : -2500 V に設定する
4. 30 分測定を行う

5.2.3 結果

6 サンプルの測定結果を図 5.4, 5.5 に示す。今回フィットについては、着目するのは第一成分 (速い発光, 式 (5.4) A_1, τ_1) と第二成分 (遅い発光, 式 (5.4) A_2, τ_2) とする。

また、最終的に求めたパラメータを使用して式 (5.5) について時間で積分することで発光波形の積分値を求めることができる。これは擬似的な発光量として考えることができ、式 (5.5) において各成分を時間について 0 から ∞ まで積分すると A_i の成分のみが残る (式 (5.6))。これを発光量として、第一成分と第二成分の割合がどう変化するかにも注目する。

$$\sum_{i=1}^2 \int_0^{\infty} \frac{A_i}{\tau_i} e^{-\frac{t}{\tau_i}} = \sum_{i=1}^2 ([-A_i e^{-\frac{t}{\tau_i}}]_{\infty} - [-A_i e^{-\frac{t}{\tau_i}}]_0) = \sum_{i=1}^2 (0 + A_i) = A_1 + A_2 \quad (5.6)$$

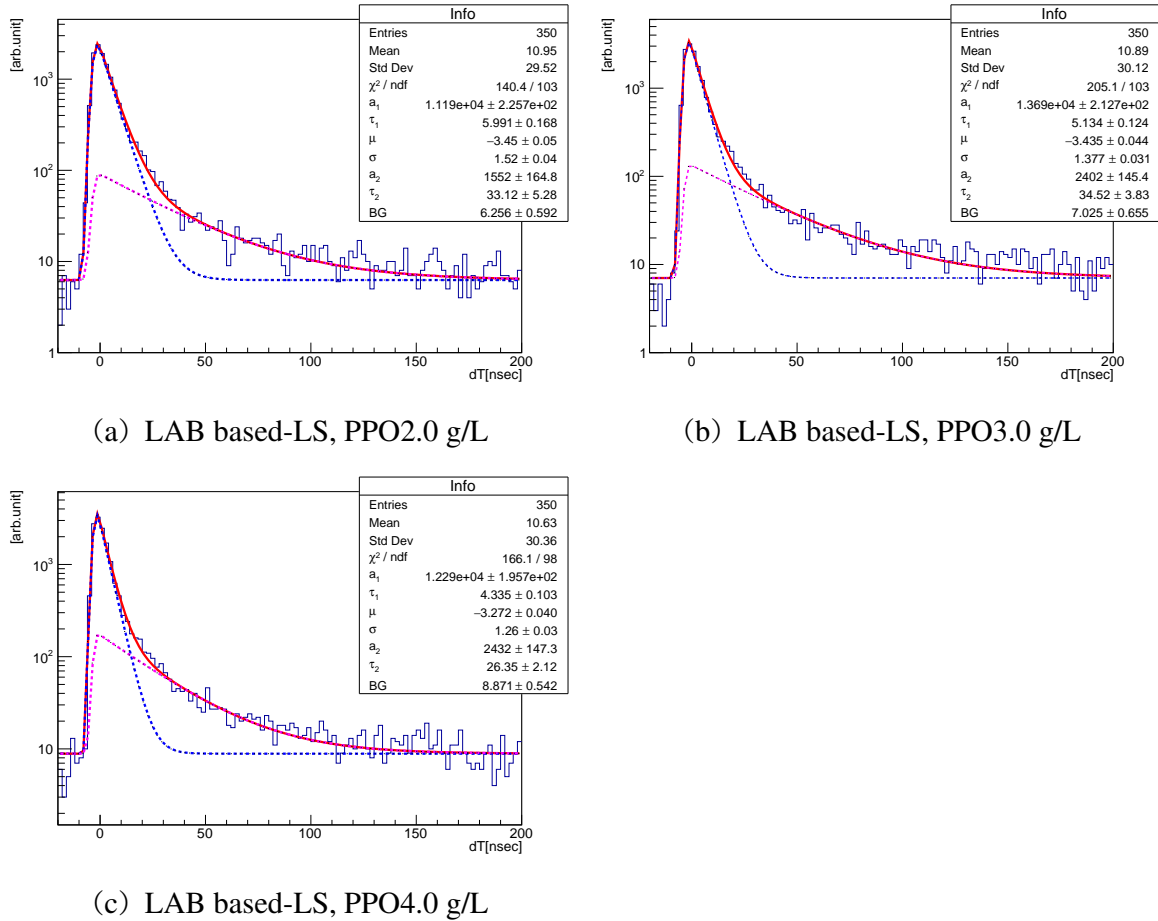


図 5.4 タイムスペクトル (LAB based-LS w/o Xe)

5.3 Xeを導入した際の発光時定数測定

Xeを導入した後の液体シンチレータについて発光時定数を測定し、変化を見ることで考察を述べる。

サンプルについては、5.2.1節で述べたサンプルに全てにおいてXeを飽和状態まで導入して測定を行った。

測定結果のフィッティングも、Xe溶解前と同様の方法で行っている。

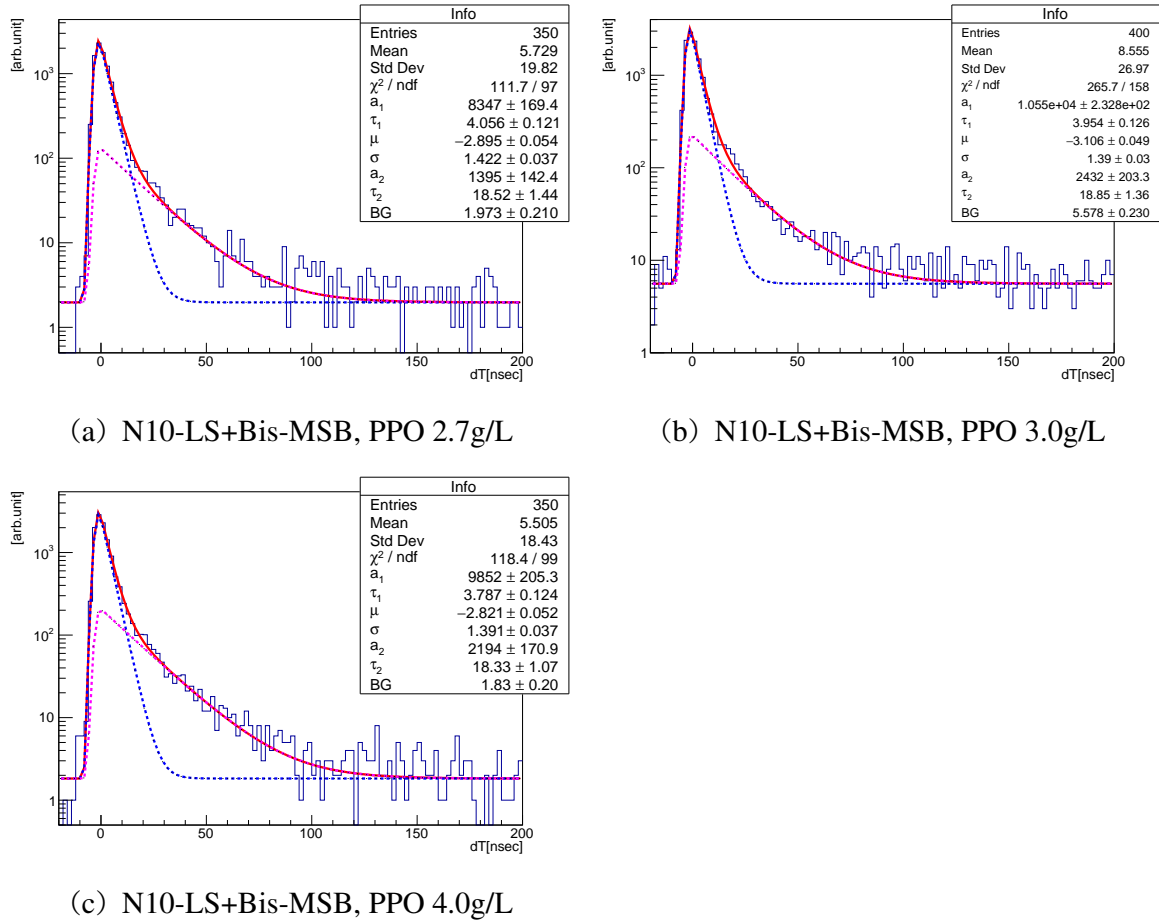


図 5.5 タイムスペクトル N10-LS+Bis-MSB w/o Xe)

5.3.1 結果と考察

測定結果を図 5.6、5.7 に示す。また、フィッティング関数について Xe 溶解前後で比較したものを図 5.8、5.9 に示している。

この測定において、第一成分、第二成分の時定数と第一成分、第二成分の割合を比較する(表 5.1, 5.4)。また、LAB based-LS と N10-LS+Bis-MSB の時定数を図示したものを図 5.10 に示す。

また、割合による相対値だけでなく A_1 と A_2 それぞれについても考えた。LAB based-LS と N10-LS+Bis-MSB において PPO 量が最小の時の発光量を $1(A_1+A_2=1)$ として、PPO を変化した時の発光量 (A_1+A_2) を 4.5.3, 4.5.4 節における発光量測定値で規格化を行う。

以上の測定からパラメータを見てみると、LAB based-LS と N10-LS+Bis-MSB では LAB based-LS の方が発光が長い傾向にある。また、Xe を導入することで発光時定数が短くなっている、それに加えて発光の成分について Xe を導入することで第二成分の割合が相対的に大きくなっていることがわかる。これは、第一成分の発光の割合が小さくなっているとも考えられる。

また、各成分 (A_1, A_2) をみると、Xe 含有時は明らか A_1 (速い成分) が減少していることがわか

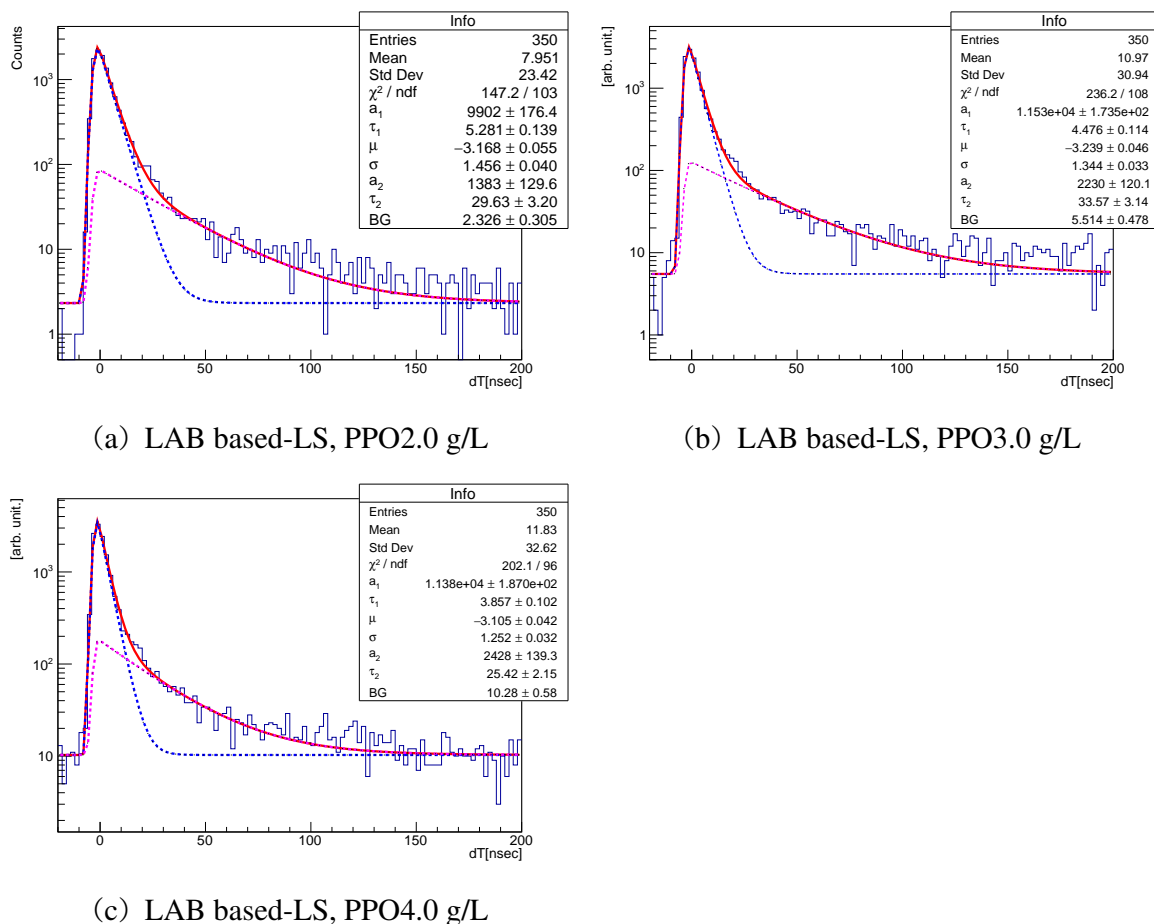
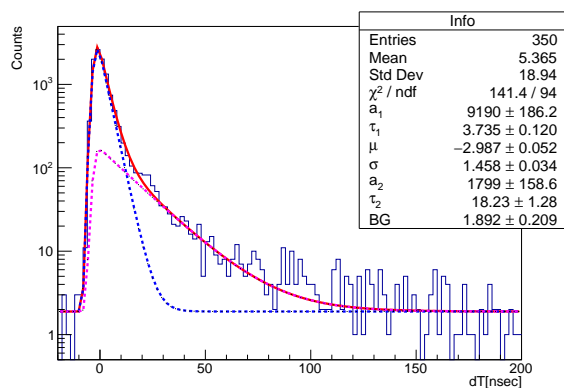


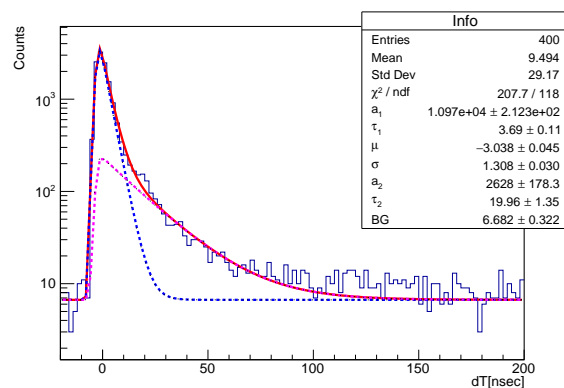
図 5.6 タイムスペクトル (LAB based-LS w/ Xe)

表 5.1 LAB based-LS タイムスペクトルパラメーター比較

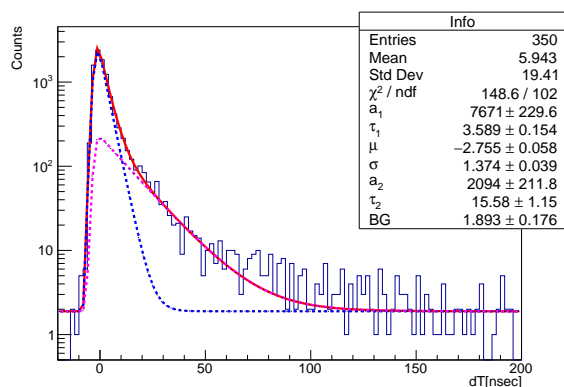
PPO[g/L]	Xe	τ_1 [nm]	τ_2 [nm]	A_2/A_1
2.0	w/o	5.991 ± 0.168	33.12 ± 5.28	0.139 ± 0.015
	w/	5.261 ± 0.139	29.63 ± 3.20	0.140 ± 0.013
3.0	w/o	5.134 ± 0.124	34.52 ± 3.83	0.175 ± 0.011
	w/	4.476 ± 0.114	33.57 ± 3.14	0.193 ± 0.011
4.0	w/o	4.335 ± 0.103	26.35 ± 2.12	0.198 ± 0.012
	w/	3.857 ± 0.102	25.42 ± 2.15	0.213 ± 0.013



(a) N10-LS+Bis-MSB, PPO2.7 g/L



(b) N10-LS+Bis-MSB, PPO3.0 g/L

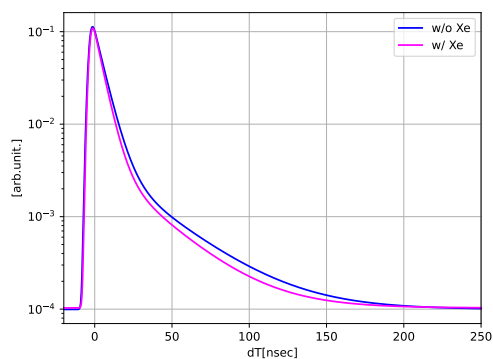


(c) N10-LS+Bis-MSB, PPO4.0 g/L

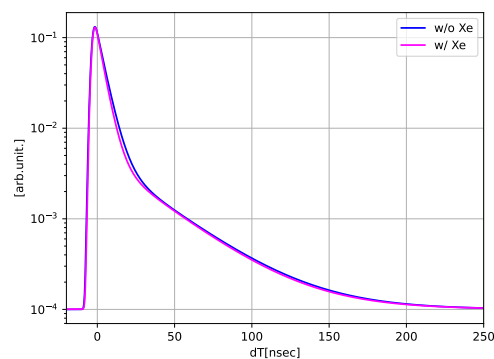
図 5.7 タイムスペクトル (N10-LS+Bis-MSB w/ Xe)

表 5.2 N10-LS+Bis-MSB タイムスペクトルパラメーター比較

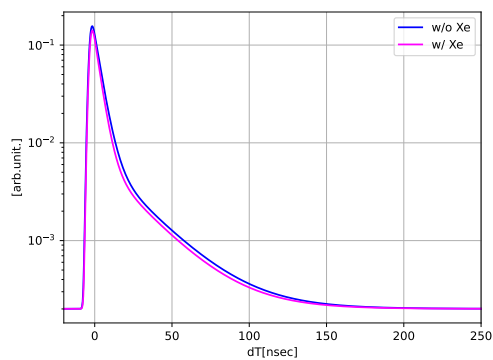
PPO[g/L]	Xe	τ_1 [nm]	τ_2 [nm][nm]	A_2/A_1
2.7	w/o	4.056 ± 0.121	18.52 ± 1.44	0.167 ± 0.017
	w/	3.735 ± 0.120	18.23 ± 1.26	0.196 ± 0.018
3.0	w/o	3.954 ± 0.126	18.85 ± 1.36	0.231 ± 0.020
	w/	3.690 ± 0.110	19.96 ± 1.35	0.240 ± 0.020
4.0	w/o	3.787 ± 0.124	18.33 ± 1.07	0.223 ± 0.018
	w/	3.589 ± 0.154	15.58 ± 1.15	0.273 ± 0.029



(a) LAB based-LS, PPO2.0 g/L



(b) LAB based-LS, PPO3.0 g/L

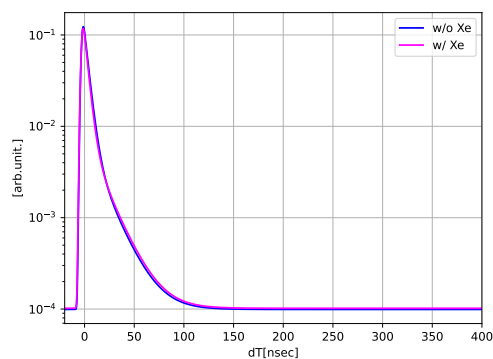


(c) LAB based-LS, PPO4.0 g/L

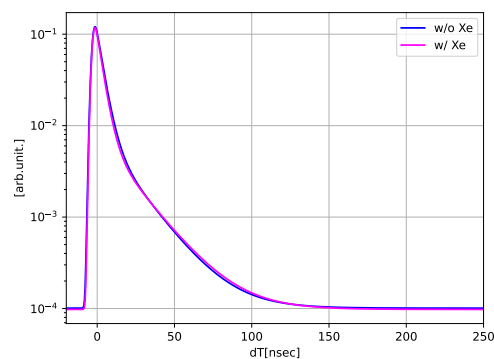
図 5.8 タイムスペクトルの比較 (LAB based-LS)

表 5.3 LAB based-LS の発光成分ごとの値。PPO が 2.7 g/L の時の発光量が $1(A_1+A_2=1)$ として 4.5.3 節の測定値で A_1+A_2 の値を規格化している

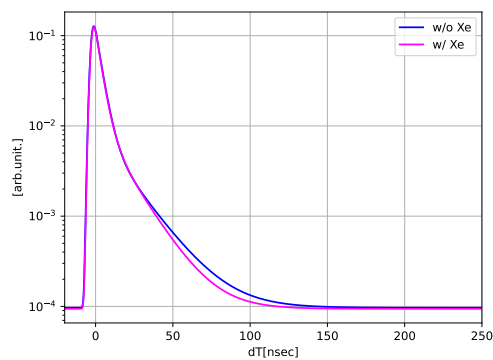
PPO[g/L]	Xe	A_1	A_2	A_1+A_2
2.7	w/o	0.878	0.122	1.000
	w/	0.746	0.104	0.850
3.0	w/o	0.894	0.156	1.050
	w/	0.805	0.155	0.960
4.0	w/o	0.952	0.188	1.140
	w/	0.808	0.172	0.980



(a) N10-LS+Bis-MSB, PPO2.7 g/L



(b) N10-LS+Bis-MSB, PPO3.0 g/L



(c) N10-LS+Bis-MSB, PPO4.0 g/L

図 5.9 タイムスペクトルの比較 (N10-LS+Bis-MSB)

表 5.4 N10-LS+Bis-MSB の発光成分ごとの値。PPO が 2.7 g/L の時の発光量が $1(A_1+A_2=1)$ として 4.5.4 節の測定値で A_1+A_2 の値を規格化している

PPO[g/L]	Xe	A_1	A_2	A_1+A_2
2.7	w/o	0.857	0.143	1.000
	w/	0.794	0.156	0.950
3.0	w/o	0.835	0.193	1.046
	w/	0.766	0.184	0.950
4.0	w/o	0.899	0.201	1.100
	w/	0.808	0.221	1.029

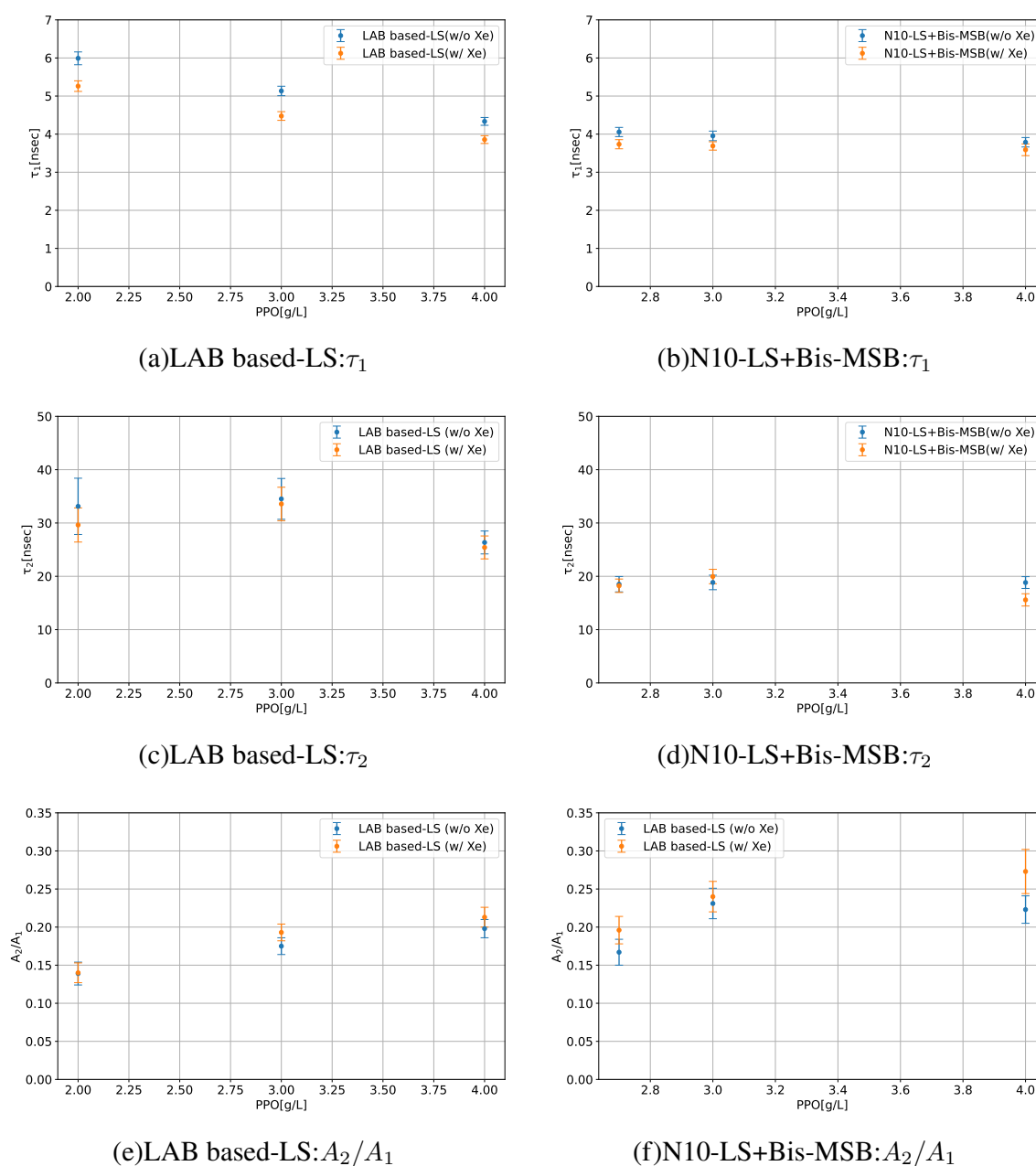


図 5.10 発光時定数パラメータの PPO・Xe による変化

る。これが発光量低下にかかわるのではないかと考えた。

Xe は閉殻であるものの、第一イオン化エネルギーは約 12 eV とされている。液体シンチレータ内では電子が励起されて基底状態に戻る際に発光をする。この発光までの過程でエネルギーが Xe のイオン化に使われてしまった場合発光は起こらない。今回は放射線源として、 ^{60}Co が使用しており 1 MeV 以上のエネルギーを持った γ 線が LS 内の電子とコンプトン散乱を起こす。このとき、反跳電子 900 keV 程度のエネルギーで散乱しており非常に高エネルギーである。従って、そのエネルギーが Xe の原子核をイオン化する可能性は十分にある。また、第一発光溶質である PPO に

関しては、第二励起状態以上まで励起された場合、内部転換と呼ばれる過程を経て第一励起状態まで戻ったのちに発光する。第一励起状態ではエネルギーは数 eV 程度と言われており、Xe をイオン化するエネルギーはほぼないが、第二励起状態以上に遷移した時に励起状態が Xe のイオン化に使われ発光を伴わない過程が発生することも考えられる。

γ 線により高エネルギーになった液体シンチレータ中の電子や、PPO 内での励起状態が持つエネルギーによって発光過程で Xe をイオン化することで、発光を伴わない過程が発生する。そうすることで、発光量の減少、発光時間の短縮が起こるのではないかと考える。

第 6 章

高精度分光光度計を用いた LS の透過率測定

本章では、新たに使用した分光光度計 UV-2600 による測定について原理や手法、測定結果について述べる。

この UV-2600 については、東京大学宇宙線研究所 神岡宇宙素粒子研究施設が所有しているものをお借りして測定を行なっている。

6.1 研究背景

本研究では、Xe 含有液体シンチレータの光学特性調査をメインとしている。しかし、透過率において先行研究段階で使用している分光光度計 (日立ハイテク社製ダブルビーム型分光光度計 U-3900) では Xe を導入して透過率を測定することが困難であった (測定方法は付録 C)。しかし、UV-2600 の試料室 (MPC-2600A) は非常に大きく、今までに使用できなかったサイズのサンプルを測定することが可能になる。また、サンプルを大きくすることによって、さらに誤差の小さい測定が可能になる。そこで、新たに Xe を導入して密閉状態を保つことができる長いセルを使用することで Xe 含有状態で液体シンチレータの透過率・減衰長の精密な測定を行った。

6.2 測定原理

6.2.1 ベースライン

測定の際には、各サンプルを測定する前に基本となる物質や条件で測定を行う (例：空気、水、シクロヘキサン)。ここで測定したものを 100% の基準として、サンプルはその値との相対値で比較を行う。この時の 100% としたものをベースラインと呼ぶ。

UV-2600 はベースラインをとると、その値はソフトウェア上に記録されてしまうため、実際の値を確認する方法はない。従って、ベースラインを撮った後にそのベースラインをとった条件でもう一度測定を行う。そうすることで、ベースラインの可視化とともにベースラインの時間変化

による安定性を見ることもできる。本来は、ベースラインをとったサンプルで測定しているため値は 100% になるはずであるが、実際はわずかに変動がある。この変動は非常に小さいものとして、各測定の前後にベースラインを測定してみることで安定性を確認するようにした。

6.2.2 UV-2600 の測定原理

UV-2600、MPC-2600A の光学系、二つを接続した際の光の通り道については図 6.1 に示す。本研究では積分球ユニットは取り外し、PMT で直接受光するセットアップにしている。

光源

光源は二種類使用しており、323 nm で切り替えられる。185 -323 nm では D2(重水素) ランプ、323 -900 nm では WI(ハロゲン) ランプが使用されている。切り替えの波長は、必要に応じて 290-370 nm の範囲で変更することができる。光源は測定中に自動で切り替えが行われる。

分光器

図 6.1 左上図の上部、入口スリット (S1) から出口スリット (S2) までが分光器になっている。光源から出た光は S1 から分光器に入り、1300 本/mm の回折格子 (GR) で分光され、S2 から出る。回折格子は島津製作所が独自に開発した、迷光の少ないものになっている。

試料室

分光器から出た光は図 6.1 左上図の右下のチョッパー (CR) で試料側光束 (S 光) と対照側光束 (R 光) の二つに分けられる。各光束は図 6.1 右上のように独立に大型試料室に導入される。S 光は M6 ミラーで反射した後、入射角 0° で PMT に入る。R 光は M2、M3 ミラーで反射した後、入射角 8 度で PMT に入る。R 光と S 光を交互に測定することで、光源の光量のふらつきなどを補正しながら測定を行うことができる。

6.3 測定器具

セル

測定サンプルを導入するセルとして、5 cm と 27.5 cm のセルを使用している (図 6.2)。このセルは、密閉状態を作れるため液体シンチレータに Xe を導入することができる。

また、セルの窓には厚さ 6 mm、口径 105 mm のアクリルを使用している (透過率: 図 6.3)。アクリルを使用するにあたって、液体シンチレータの発光波長である下限値である 350 nm 以下まで透過率が非常に良いものを採用した。また、測定方法に関しては、Xe ランプから照射された光を回折格子、ミラー、絞りを通してサンプルにあて、透過してきた光を積分球に接続している PMT で検出することで透過度を算出している。この時透過度の基準は空気としており、フレネル反射などは考慮していない (概念図 6.4)。

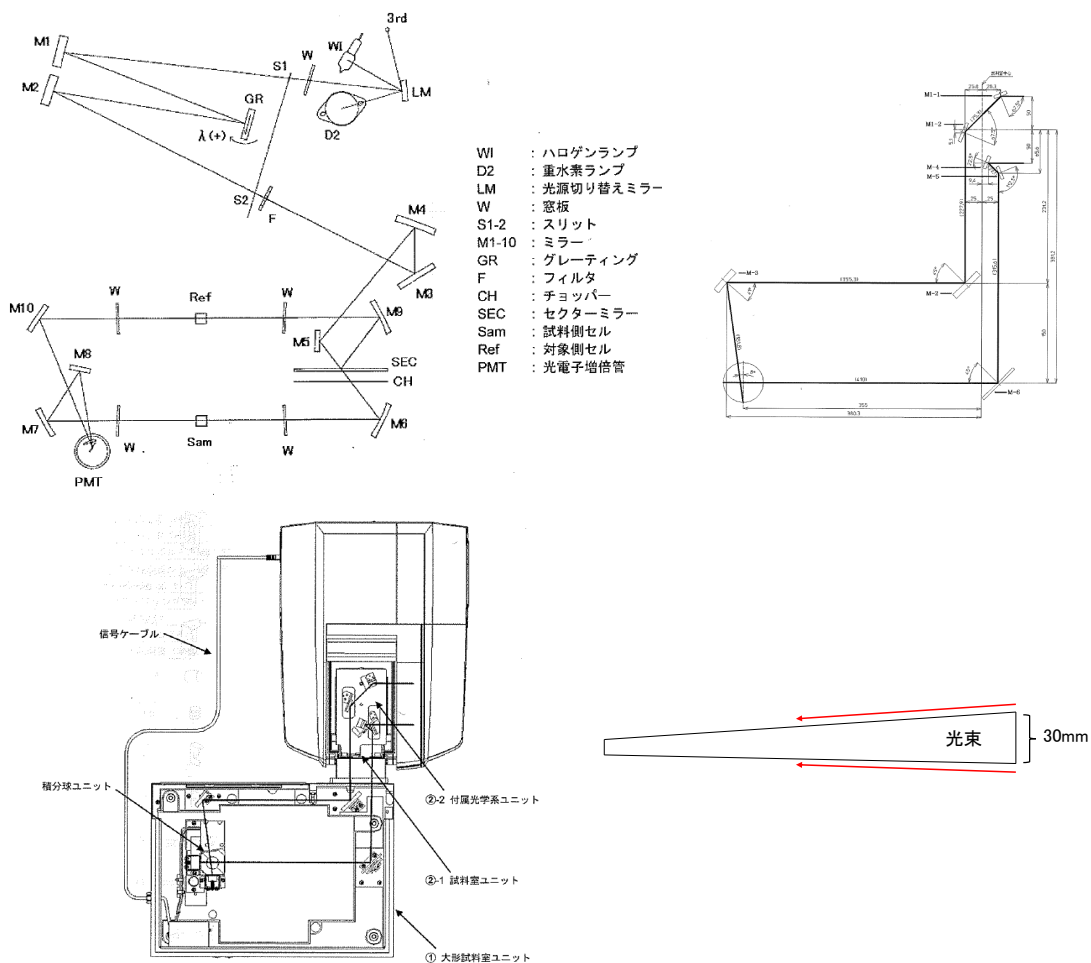


図 6.1 UV-2600 と MPC-2600A の測定原理。左上図：UV2600 の光学系、右上図：MPC-2600A の光学系、左下図：UV-2600 と MPC-2600A を接続した時の光の通り道 [48, 49]、右下図：光束の様子。30 mm 四方の正方形の光束で照射され徐々に絞られていく。



図 6.2 測定に使用したセル。左上:5 cm セル、右上:27.5 cm セル、左下: セルのアクリル面

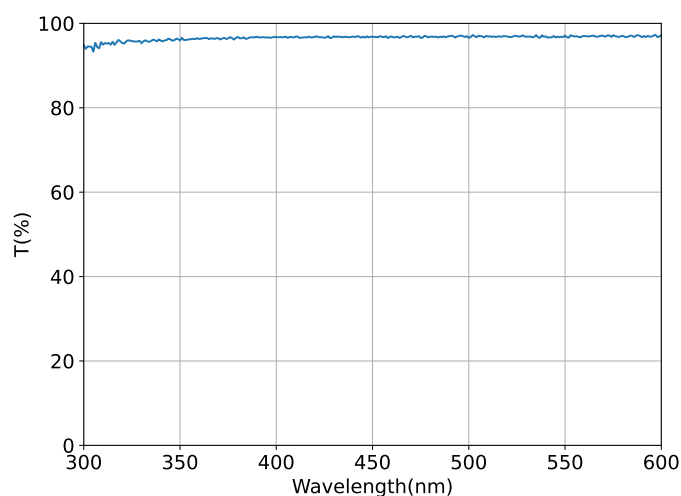


図 6.3 使用したアクリルの透過率

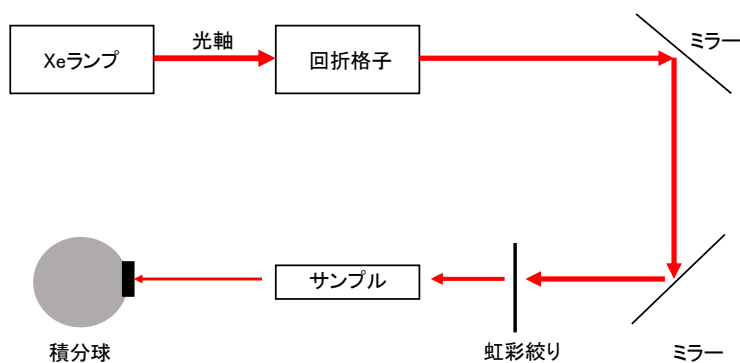


図 6.4 アクリルの透過率測定セットアップ

6.4 測定における条件

測定について、サンプルの測定をするにあたり環境などの条件は一定に保つ必要がある。条件に関しては、過去にこの機器を使用している先行研究 [50] を参考にして行なった。

最終的により精密な測定を行うために以下の条件に注意して測定を行った。

6.4.1 測定環境条件

- UV-2600 を使用する際は、室温を 20°C 付近で一定に保ち、セルに結露などがないかどうか確認して測定した。
- セルのアクリル面は分光器の光が入り出すため、結果に大きく影響する。測定の際には、アクリル表面に埃などがついていないか、内側に気泡がついていないか確認してから測定

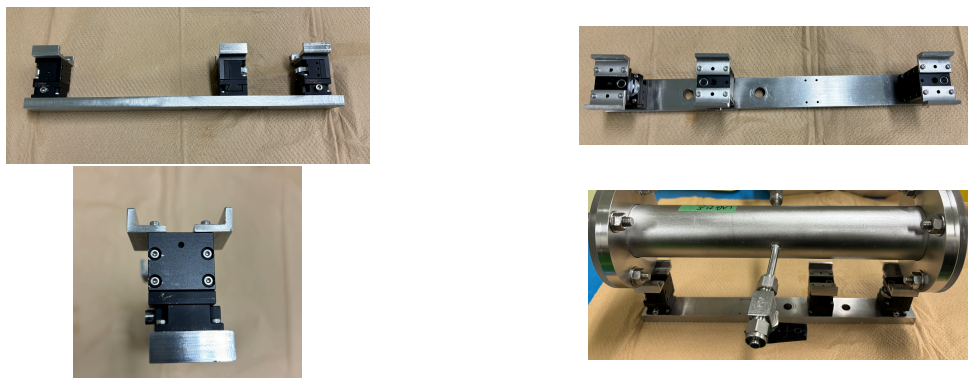


図 6.5 xz ステージ (シグマ光機社製 TASB-254)。右下は 27.5 cm セルを乗せた状態。

を行うようにした。また、アクリルは非常に傷がつきやすいため、測定の都度アクリル面を確認して最も傷のない部分に光を入射させるように位置を調整した。

- セルが光軸に対してより平行な状態にするために xz ステージ (シグマ光機社製 TASB-254, 図 6.5) を使用して入射面と出射面に対してアクリル面が垂直になるように調整をした。
- UV-2600 は点灯してからランプが安定するまで時間がかかる。本測定では、電源を入れてから 120 分以上待ってから測定を行なった。

6.4.2 測定中の条件

- ベースラインは 250 -650 nm の範囲で行い、測定は 300 -600 nm の範囲で行なった。
- ベースラインを測定したのち、すぐにそのベースラインに使用したサンプルで測定をおこないベースラインを確認するようにした。また、サンプルの測定後にも同じ測定を行うようにして、ベースラインの安定を見るようにした。明らかにベースラインがずれている (0.5% 以上) 場合は測定を再度やり直すようにした。
- ベースラインが安定しているにも関わらず、同じサンプルで再現性がない場合は測定条件を見直して再測定を行なった。

6.5 誤差評価

測定にあたって起きうる誤差について評価をした。

1. ベースラインの時間変動による誤差
2. サンプル測定 1 回あたり、連続で 3 回測定する仕様になっており、その 3 回の測定の誤差
3. サンプルを人の手で取り出して再度セットし直すことで生じる人為的な誤差
4. 測定後にサンプル同士で比をとる際の 2 サンプル目の誤差 (2,3 と同様)

が測定において考えられる誤差である。次節以降で説明するが、今回の測定では液体シンチレータを導入するセルを二つ用意している。一つは 5 cm、二つ目は 27.5 cm の容器を使用し、二つの

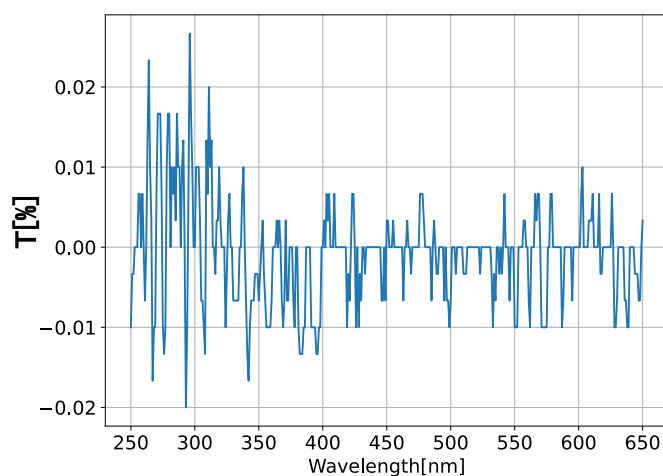


図 6.6 UV-2600 のベースライン安定性。空気の透過率-100 をして、ベースラインの 100% からのずれを示している。

長さの透過率を測定して比を取ることで減衰長を求めている。したがって、5 cm, 27.5 cm それぞれで誤差を測定する必要がある。

ベースラインの安定性

本研究では、空気を透過率 100% のベースラインとして測定を行っている。ここでベースラインの安定性を測定ごとに確認する必要がある (図 6.6)。

ベースラインを 100% としているが、測定器の性能上全て 100% になるわけではなく多少のずれが生じる。図 6.6 をみると、300 -650 nm では $\pm 0.01\%$ 、300 nm 以下では $\pm 0.02\%$ 程度になっている。短い波長のエリアでは空気でも透過率が低くなっていく部分であり、ベースラインのずれ大きくなる。

本研究ではベースラインのずれが $100 \pm 0.2\%$ になっていることを確認してから測定を行うこととする。

サンプル測定の誤差

ここでは、前節で示した誤差 2, 3, 4 について考える。この二つの誤差についてはまとめて見積もることとする。同サンプルにおいて 1 回について 3 回連続で測定する作業を 1 セットとして、1 セット毎にサンプルを取り出し再度セットして光の入射位置を調整して測定を 3 セット行った。この 3 セット、合計 9 回の測定の標準偏差を求めることで誤差を見積もった。

今回液体シンチレータのサンプルとしては、3 種類使用している (組成は表 2.1, 4.2, 4.3)。

- KamLAND-LS (w/o Xe)
- N10-LS+Bis-MSB (w/o, w/ Xe)
- LAB based-LS (w/o, w/ Xe)

それぞれにおいて、3セットの測定を5 cm セルと 27.5 cm セルにおいて行い標準偏差を算出した(図 6.7)。本研究では KamLAND-LS のみ Xe 含有状態で測定を行っていない。理由としては KamLAND2-Zen 実験において KamLAND-LS に Xe を導入する可能性がないためである。

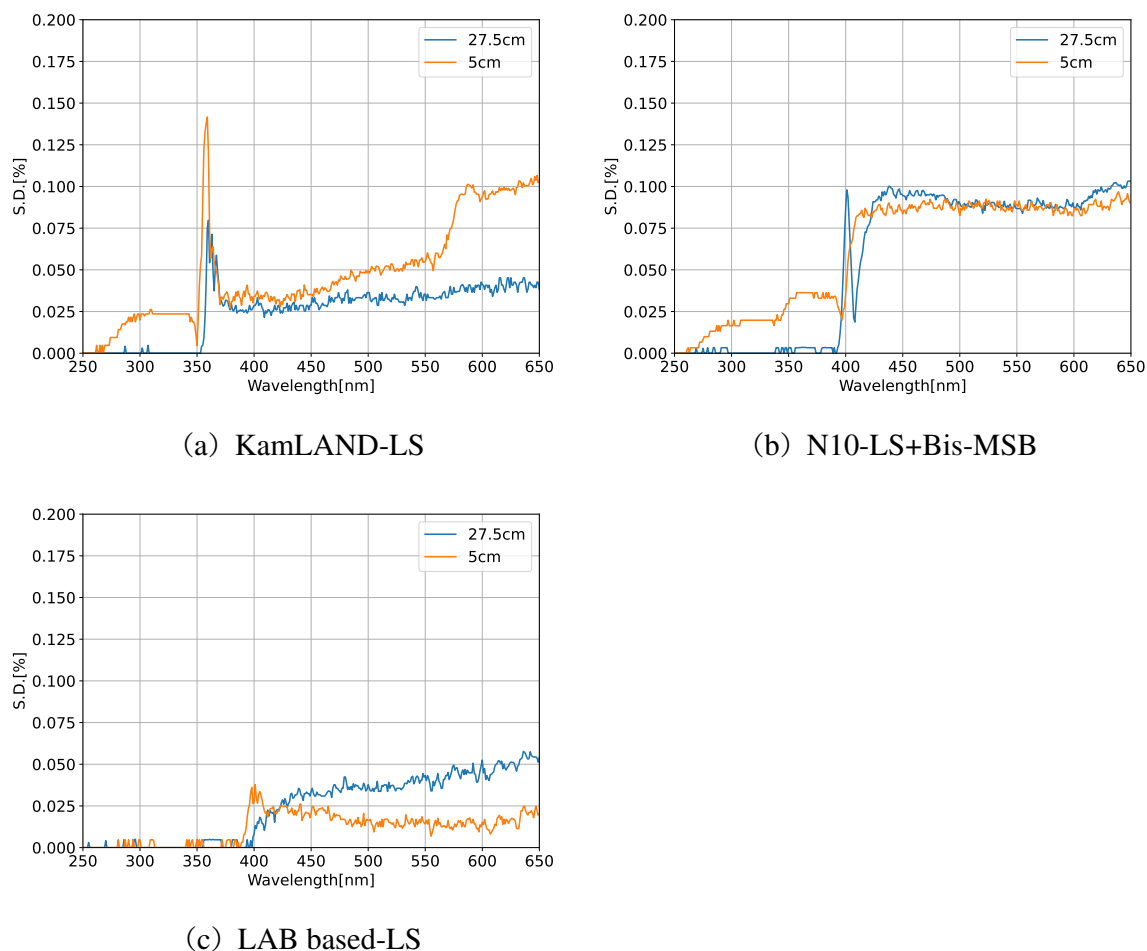


図 6.7 UV-2600 における各サンプルの透過率の誤差

次節以降で液体シンチレータの減衰長を算出しているが、その時の誤差はこれらの各サンプルの誤差について誤差伝搬を使用して見積もっている。

6.6 減衰長測定

6.6.1 原理

光の透過率は一般的に、特定の波長で入射光が試料を通過する割合で以下のように表すことができる。

$$T = \frac{I}{I_0} \quad (6.1)$$

I_0 は入射光の放射発散度で、 I は試料を通過した光の放射発散度である。また、ランベルト・ベールの法則から

$$T = e^{-\alpha x} \quad (6.2)$$

と表すこともできる。今回測定する減衰長は、式 (6.2) において T が $1/e$ になる時の x と定義されている。また、今回 5 cm と 27.5 cm のセルを使用する理由として境界面での反射 (フレネル反射) がある。フレネル反射とは、屈折率の違う物質同士が接している境界面を光が通過すると、ある一定量の光が反射させる現象である。光が垂直に入射した際に反射する光は式 (6.3) で表される。

$$(\text{反射}) = I_0 \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right)^2 \quad (6.3)$$

ここで、 I_0 は入射光強度である。 n_1 と n_2 は各物質の屈折率である。これでは、空気を 100% として測定した際に空気とアクリル、アクリルと液体シンチレータの境界面で光が反射された状態の透過率が出てしまう。ここで、5 cm と 27.5 cm の透過率を測定し比をとることで、フレネル反射やその他アクリルなどの透過率の影響を打ち消し、液体シンチレータの 22.5 cm の透過率を求めることができる。この透過率が分かれば、減衰長を算出することができる (式 (6.4))。

$$\begin{aligned} T_{5\text{cm}} &= e^{-\alpha' \cdot 0.05}, T_{27.5\text{cm}} = e^{-\alpha'' \cdot 0.275} \\ T_{27.5\text{cm}}/T_{5\text{cm}} &= T_{22.5\text{cm}} = e^{-\alpha \cdot 0.225} \\ \alpha &= -\frac{\ln(T_{22.5\text{cm}})}{0.225} \\ l_{\text{減衰長}} &= \frac{1}{\alpha} = -\frac{0.225}{\ln(T_{22.5\text{cm}})} \end{aligned} \quad (6.4)$$

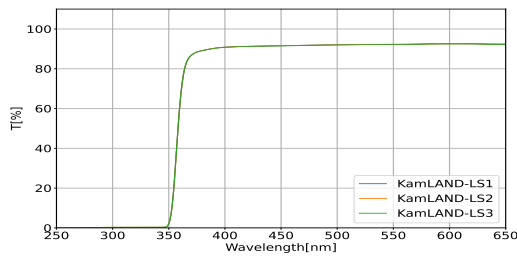
6.6.2 測定

まずは、5 cm と 27.5 cm それぞれにおいて透過率を測定した (図 6.8)。

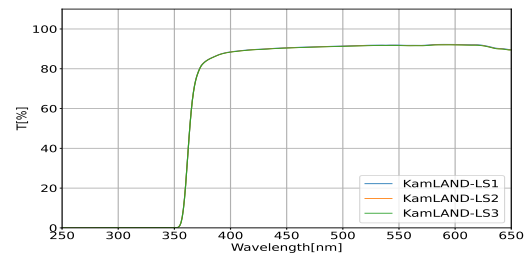
以上の測定結果から、 $T_{27.5\text{cm}}/T_{5\text{cm}}$ より 22.5 cm における各サンプルの透過率を算出した (図 6.9)。

各サンプルにおいて、透過率が減少したのちに再度急激に上がっている部分が見られる。これは、5 cm ・ 27.5 cm の透過率がどちらも限りなく 0 に近づいており 0 付近同士で除しているため値が急激に変化している。この部分は透過率はほぼ 0 と考える。

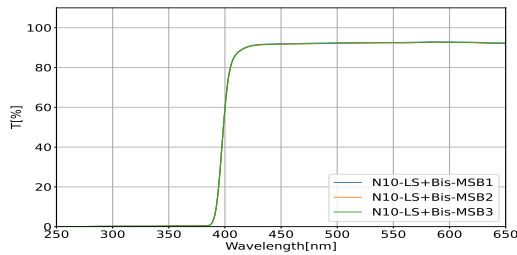
これらの測定から各サンプル 3 回分の減衰長を式 (6.4) を用いて算出した (図 6.10 - 6.13)。また、算出結果の図において青と赤で色付けした部分がある。この部分は図 3.6 において、PPO のみの発光波長領域 (青)、PPO+Bis-MSB の発光波長領域 (赤) をそれぞれ 90% カバーする領域を示している。また、y 軸において 6.5 m の部分に線を引いているのは KamLAND 検出器において



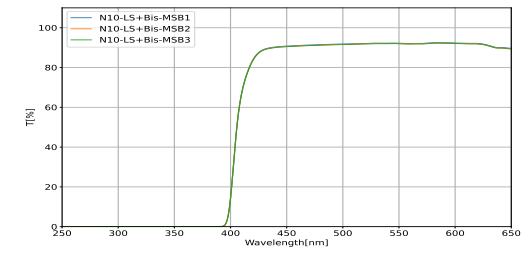
(a1) KamLAND-LS 5cm(w/o Xe)



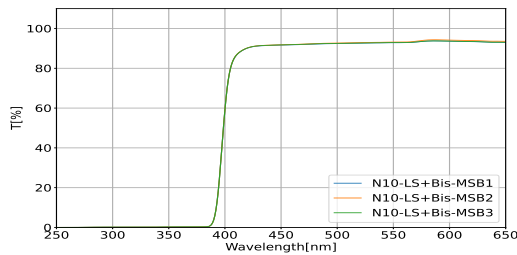
(a2) KamLAND-LS 27.5cm(w/o Xe)



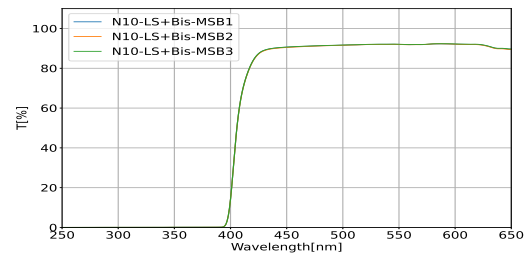
(b11) N10-LS + Bis-MSB 5cm(w/o Xe)



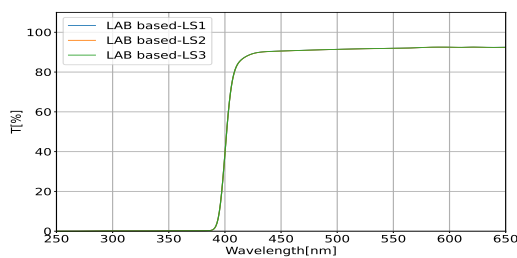
(b12) N10-LS + Bis-MSB 27.5cm(w/o Xe)



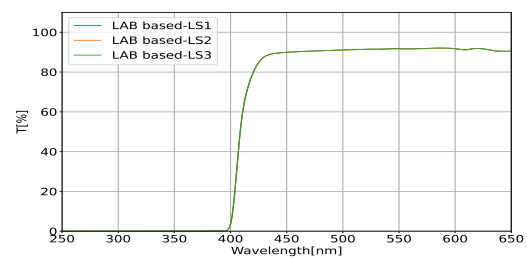
(b21) N10-LS + Bis-MSB 5cm(w/ Xe)



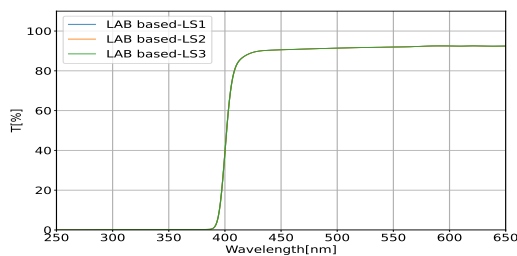
(b22) N10-LS + Bis-MSB 27.5cm(w/ Xe)



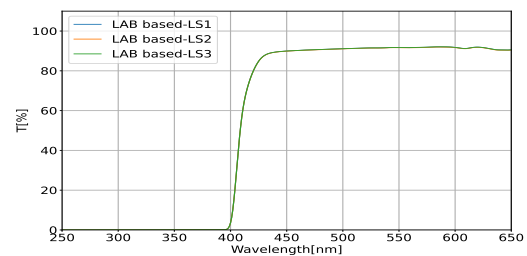
(c11) LAB based-LS 5cm(w/o Xe)



(c12) LAB based-LS 27.5cm(w/o Xe)

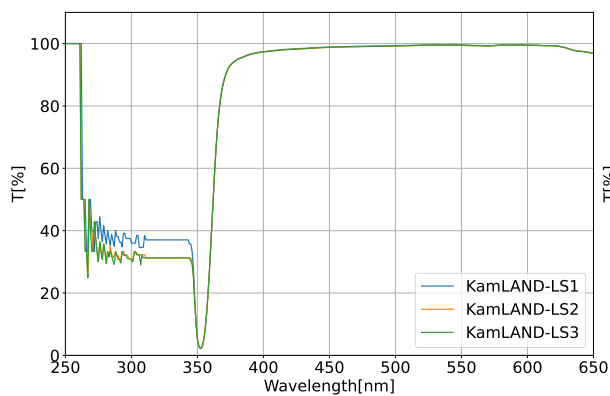


(c21) LAB based-LS 5cm(w/ Xe)

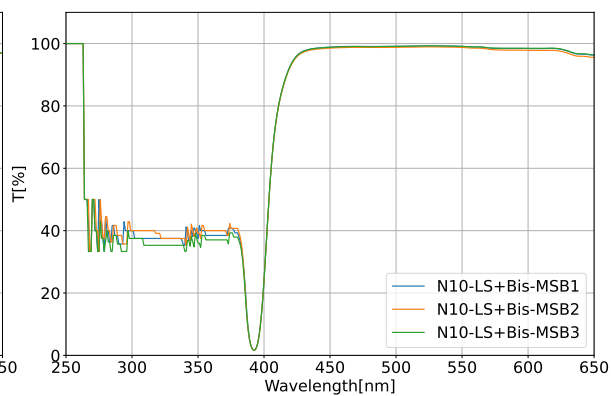


(c22) LAB based-LS 27.5cm(w/ Xe)

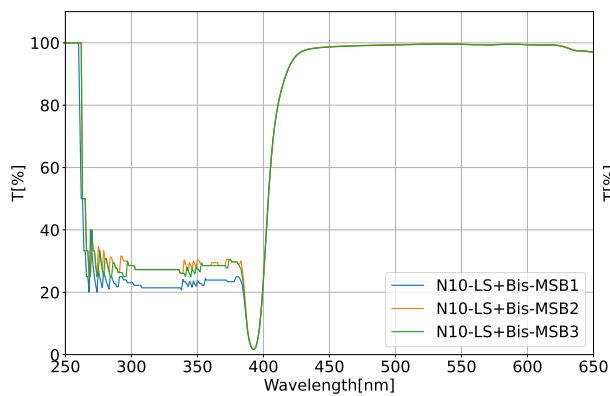
図 6.8 UV-2600 における各サンプルの透過率測定 (左:5 cm セル、右:27.5 cm セル)



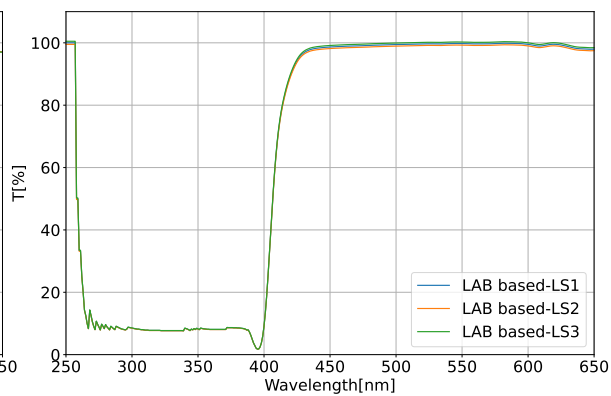
(a1) KamLAND-LS(w/o Xe)



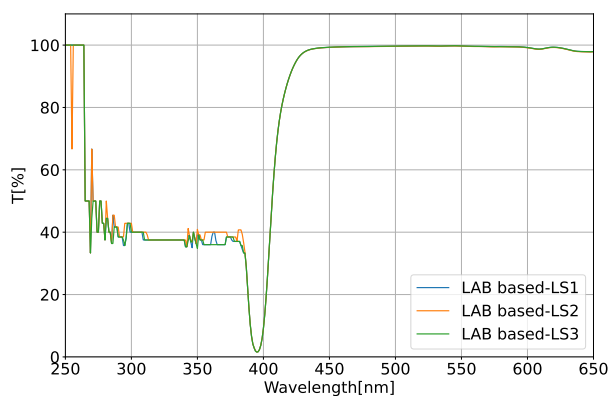
(b1) N10-LS+Bis-MSB(x/o Xe)



(b2) N10-LS+Bis-MSB(w/ Xe)



(c1) LAB based-LS(w/o Xe)



(c2) LAB based-LS(w/ Xe)

図 6.9 UV-2600 における各サンプルの 22.5cm 透過率

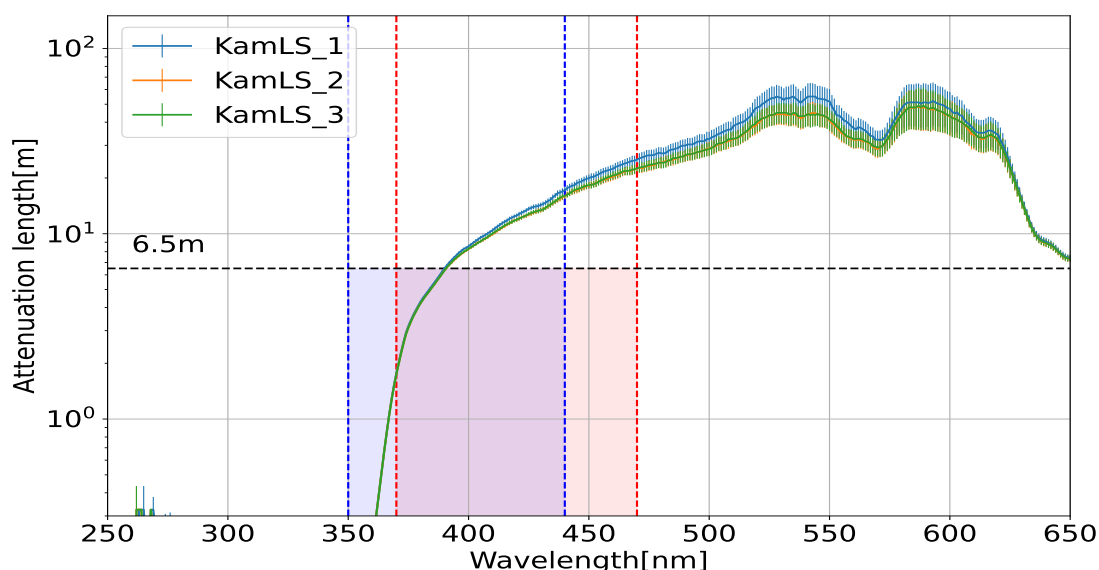


図 6.10 UV-2600 における kamLAND-LS の減衰長 (w/o Xe)

液体シンチレータタンクの半径が約 6.5 m となっているためである。本研究では、この青と赤の領域が注目領域となっている。

この 3 回の減衰長の測定において実際に採用する値として、平均値を使用することとする。また、誤差についてはそれぞれの測定のエラーを見たときにプラスのエラーは最大部分を、マイナスのエラーは最小部分を採用した。結果は図 6.15 に示す。

6.6.3 先行研究との比較

ここでは、新測定と先行研究時点での測定の比較を行う。今回は KamLAND-LS をもとに行う。先行研究時点では、KamLAND グループで所有している分光光度計 (日立ハイテク社製ダブルビーム型分光光度計 U-3900) を用いて 9 cm 透過率を測定していた。測定の詳細については付録 C で説明している。それぞれの測定における減衰長は図 6.16 に示す。

先行研究における測定については、300 -600 nm の範囲の測定になっている。二つの測定を比較すると誤差が非常に小さくなっていることがわかる。実際注目している波長領域においても誤差は 10-50% になっているため、より精度の良い測定になっていることがわかる。

6.7 考察

先行研究時点では、シクロヘキサンを 100 として相対的な透過率から減衰長を算出していた。これはシクロヘキサンが短距離では透過率がほぼ 100%、すなわち式 (6.2) における吸収係数 α が非常に小さいという仮定のもと算出していた値である。実際には、シクロヘキサンの吸収係数は

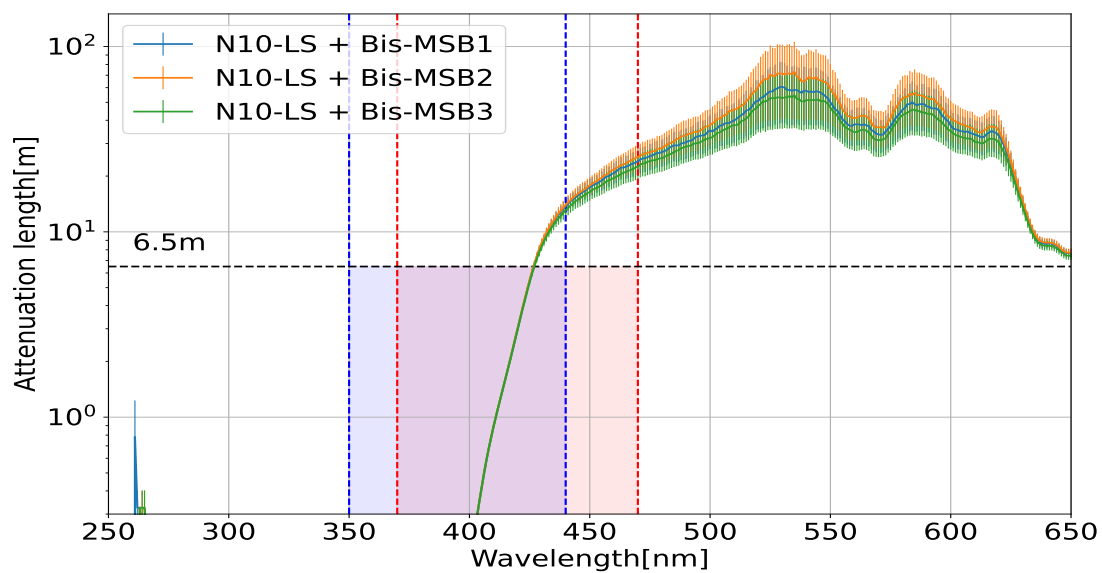


図 6.11 UV-2600 における N10-LS+Bis-MSB の減衰長 (w/o Xe)

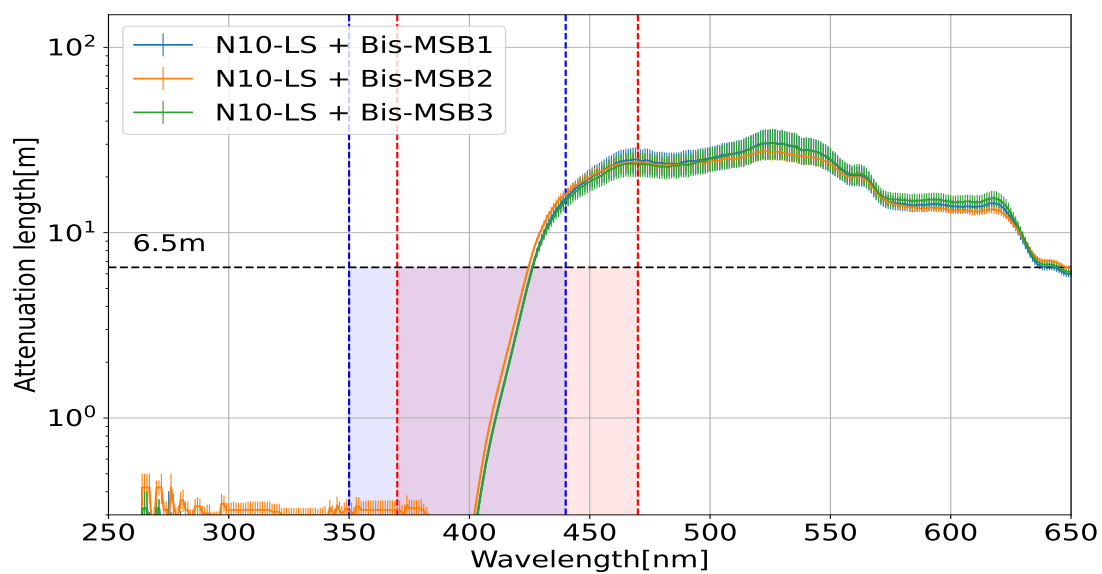


図 6.12 UV-2600 における N10-LS+Bis-MSB の減衰長 (w/ Xe)

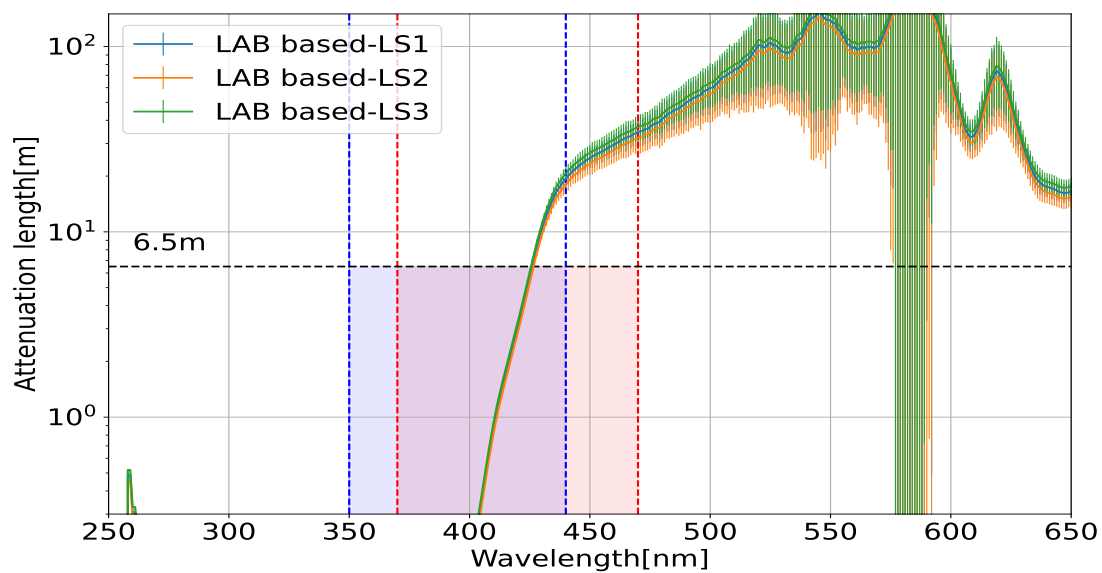


図 6.13 UV-2600 における LAB based-LS の減衰長 (w/o Xe)

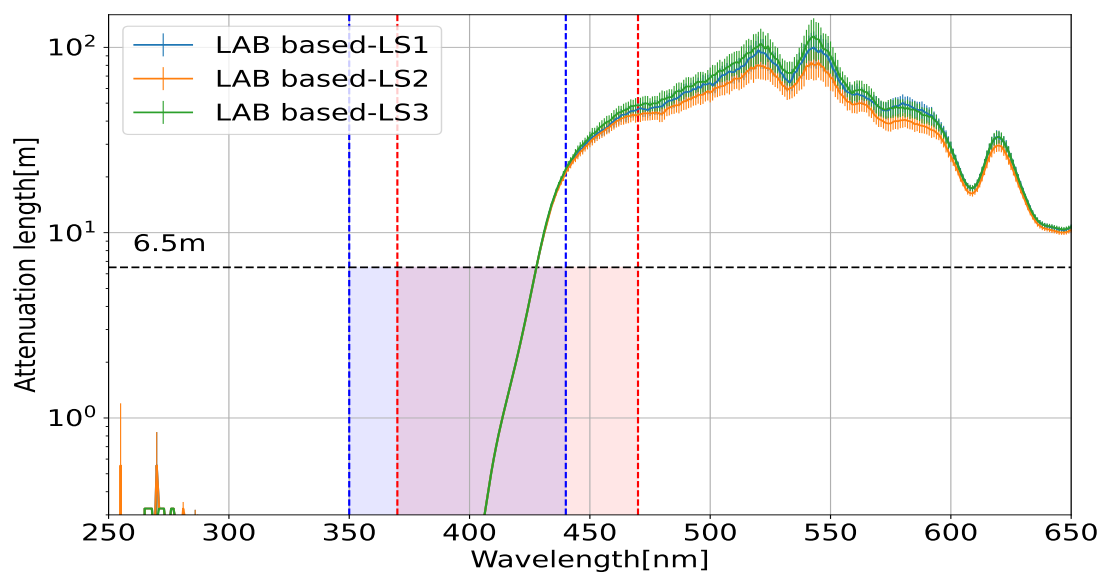


図 6.14 UV-2600 における LAB based-LS の減衰長 (w/ Xe)

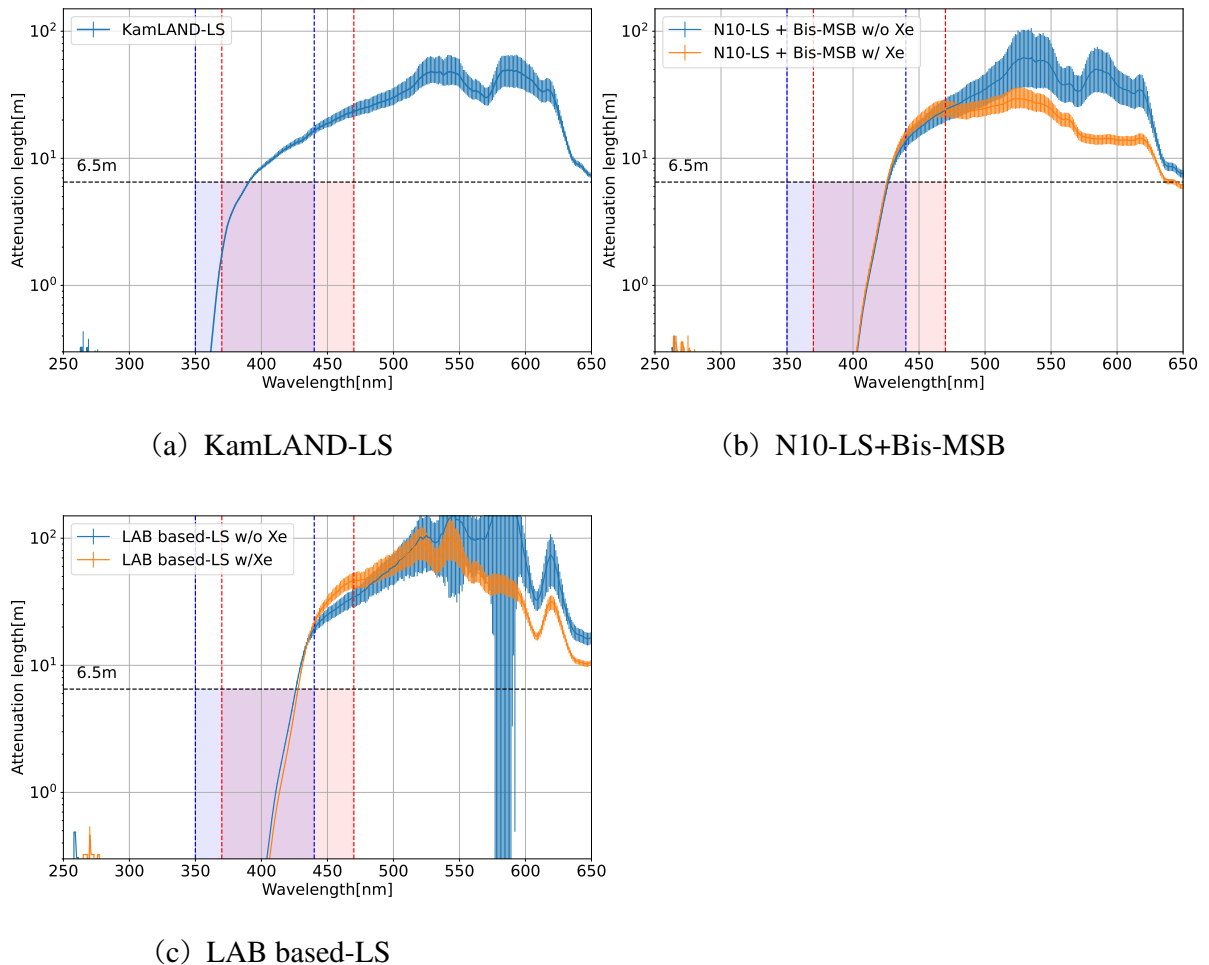


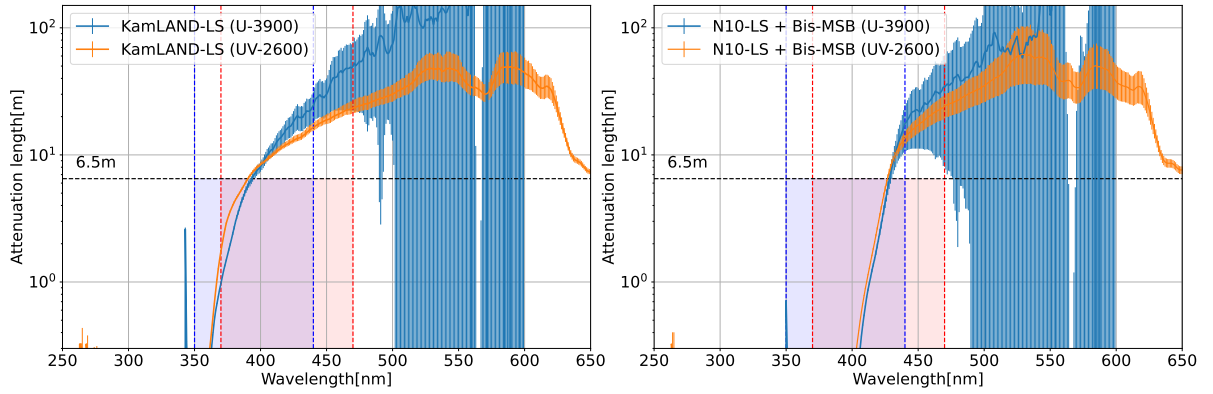
図 6.15 UV-2600 における各サンプルの減衰長の平均値

ゼロではないため少なからず影響を受けてしまう。実際、本研究の手順で測定したシクロヘキサンの減衰長と吸収係数を図 6.17 に示す。結果を見てみると最小でも 10^{-2} /m 程度になっており限りなく 0 とは言い難い。

その点、本研究では 5 cm と 27.5 cm を用いて真の透過率を算出しており、より正確な値になっていると考えられる。また、先行研究と比較すると減衰長が誤差の範囲外になっている部分 (400 nm 以下) がある。これは KamLAND-LS において顕著である。これは液体シンチレータの透過率が急激に下がる部分でもあり、測定系などで結果に差が出てしまう可能性があるためであると考えられる。

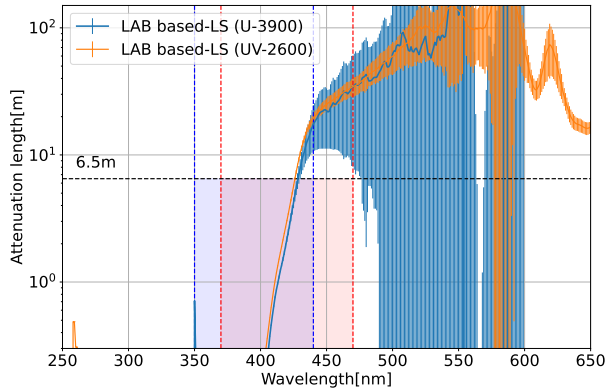
また、図 6.15 を見ると Xe の有無で長波長側の減衰長が誤差よりもずれる場合があった。これは、Xe による影響であるかは現在判明していない今回は注目している波長領域で大きな変化がないとして値を使用した。今後 Xe による影響さらに考察する際にはより複数回の測定を行うことで Xe による透過率の影響などを調査する必要がある。

本研究における、減衰長測定の誤差について評価を行うために Geant4 によるシミュレーショ



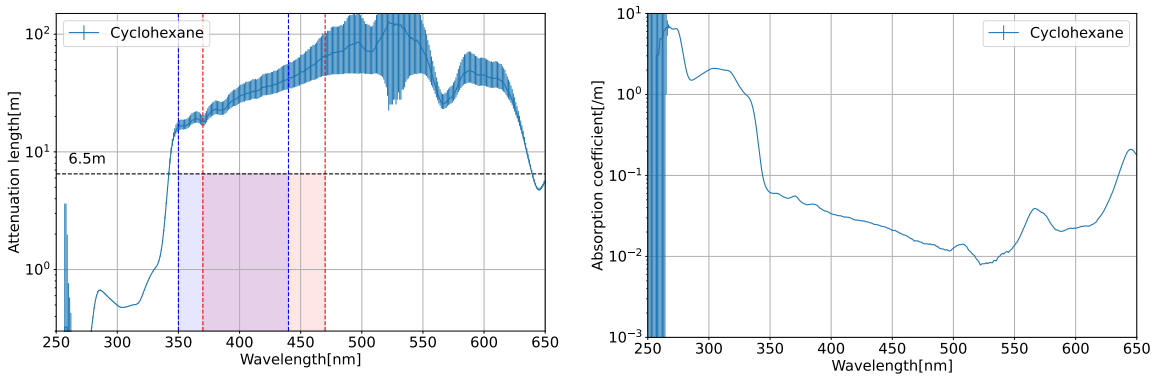
(a) KamLAND-LS

(b) N10-LS+Bis-MSB



(c) LAB based-LS

図 6.16 本研究と先行研究の減衰長比較 (w/o Xe)。青が先行研究 (U-3900 使用)、橙が本研究による測定 (UV-2600)



(a) 減衰長

(b) 吸収係数

図 6.17 UV-2600 におけるシクロヘキサンの減衰長と吸収係数

ンを行った。詳細は 7 で述べるが、検出器中心で 2.6 MeV の γ 線を発生させた時、誤差による検出光量は平均値の検出光量を LY_{ave} とした時、検出光量の差は $-2.1\% - +2.5\%$ となった。KamLAND 検出器のエネルギー分解能は $6.4\%/\sqrt{E[MeV]}$ とされており、 $\sqrt{E[MeV]}$ あたりの誤差で考えると、 $-1.3 - +1.6\%/\sqrt{E[MeV]}$ の広がりとなる。これは、KamLAND 検出器の分解能の 4 分の 1 程度であり 7 で述べるシミュレーションによる検出光量予測において十分な測定誤差であると言える。実際、同様の手順で U-3900 を用いた場合の誤差を用いてシミュレーションを行うと LY_{ave} から、検出光量が $-8.2\% - +6.8\%$ となった。したがって本研究の測定における透過率測定は先行研究と比較して検出光量の誤差は 3 分の 1 以下という結果を出した。これらを元に考えると本研究の測定が先行研究による測定より確からしいと言える。

第7章

KLG4 を用いたシミュレーション

本章ではこれまでの 3-6 章までで測定した各特性を用いて、シミュレーションソフトウェア Geant4 を元にした KLG4 を使用して、検出光量および分解能の大きな評価を行う。

7.1 シミュレーション構築・条件設定

7.1.1 Geant4

今回使用したシミュレーションソフトウェアは Geant4[51] である。Geant4 は C++ を使用言語としているため、ジオメトリ設計・物質定義・物理プロセス定義などを設定する上で有用なクラスが多数用意されている。そのため目的に応じてクラスを変更することで設定を容易に変更できる。これらの理由から素粒子・原子核物理学や宇宙物理学の分野で広く使用されている。

7.1.2 KLG4

本研究で構築したプロトタイプ検出器のシミュレーションは、KamLAND 検出器を再現した大規模シミュレーション”KLG4”をもとにしている。KLG4 は KamLAND 検出器のジオメトリを再現しているだけでなく、KamLAND 検出器に用いられている物質の組成や光学特性などが登録されている。

7.1.3 ジオメトリ

今回使用したジオメトリは KamLAND-Zen800 の検出器 (図 2.5) が再現されたものを使用した。

7.1.4 液体シンチレータ

本研究では、主に 4 種類の液体シンチレータを使用してシミュレーションを行った。

- KamLAND-LS

- N10-LS
- N10-LS+Bis-MSB
- LAB based-LS(w/, w/o Bis-MSB)

組成については、表 2.1,4.1,4.2,4.3 に示す。サンプルにおいては、w/ Xe と w/o Xe の 2 種類のパターンがある。インナーバルーン内に導入する液体シンチレータについては Xe 含有時のパラメータを使用した。基本的には以下の図 7.1 のように LS を導入している。

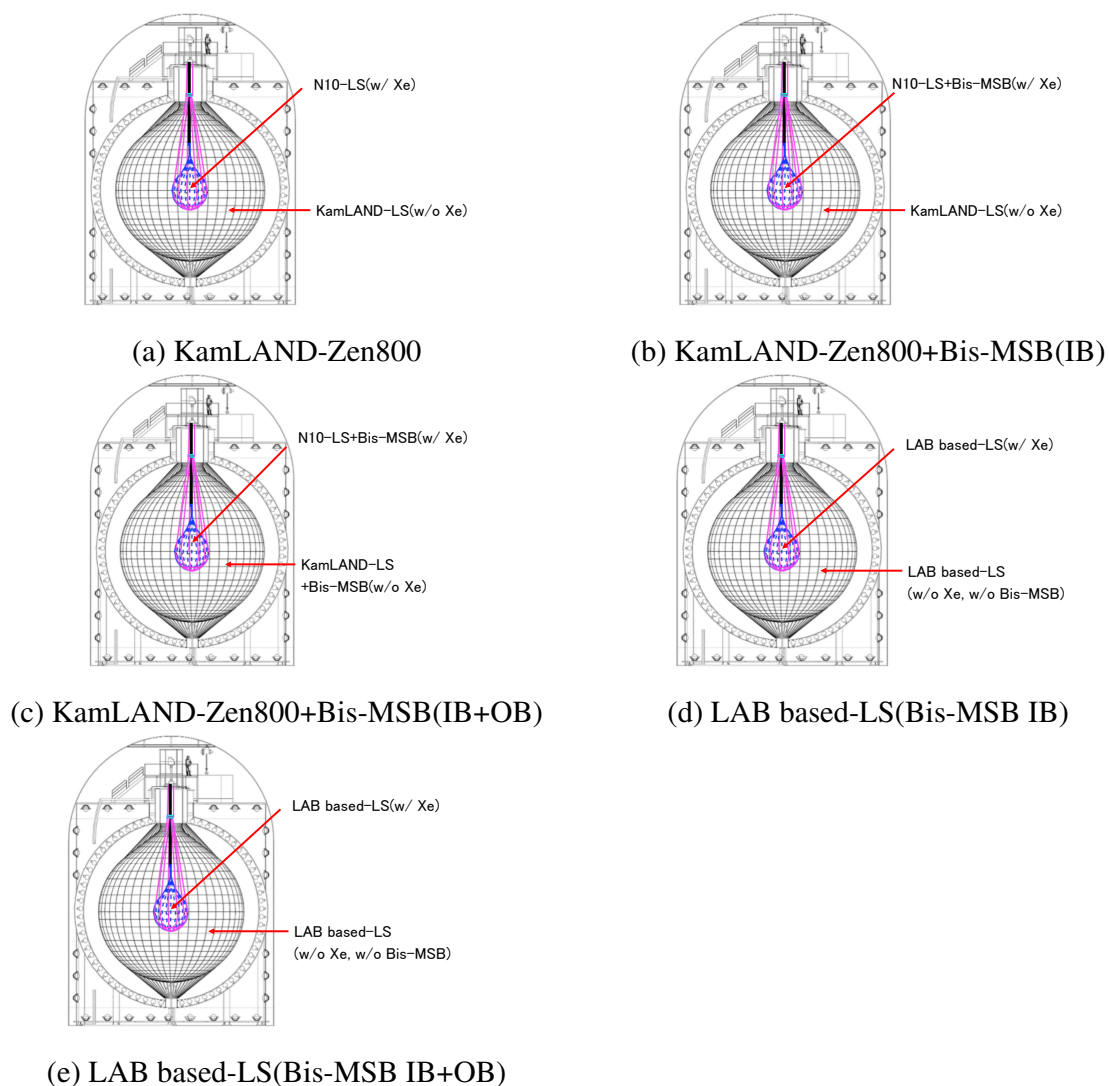


図 7.1 ジオメトリにおける LS の配置

7.1.5 パラメータ

PMT

発生した光を検出する PMT においても波長依存性が存在している、KamLAND2-Zen 実験では高量子効率 (HQE) の PMT を導入することが予定されている。したがって、本研究では現在の

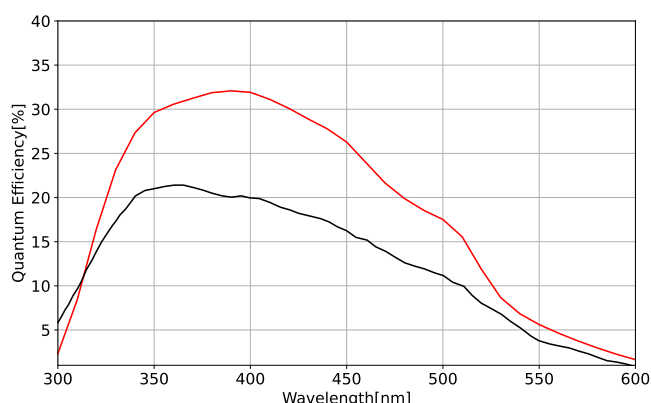


図 7.2 PMT の量子効率

17 インチの PMT と新型 20 インチ HQE の PMT を使用した場合の光量も比較する。ここでは、新型の PMT について材質などが多少違うが、量子効率のみ変更することでシミュレーションを行う。二つの量子効率については以下に示す。

また、17 インチ PMT を全て 20 インチ PMT に変更することで検出器内の被覆率が 34% から 42% に増加するためその効果は単純に増加分だけ検出光量が増加するものとする [37]。

集光ミラー

KamLAND2-Zen 実験では PMT に多角形型の集光ミラーを取り付けることで実質的な光電面の被覆率の向上が計画されている。この集光ミラーの導入で集光量が 2 倍以上向上することが期待されている [37]。

しかし現在の KLG4 のジオメトリに集光ミラーを追加するためには複雑なジオメトリの修正が必要である。したがって今回は、[37] を参考にして単に検出光量が 2 倍になると仮定してシミュレーションに組み込むことにした。

発光波長

一般に液体シンチレータのシンチレーション光は単一の波長ではなく広がりのある波長分布を持つ。今回は PPO のみと PPO+Bis-MSB が入っている液体シンチレータを使用しているため、それぞれにおいて 3.1 節で測定したデータを使用した (図 7.3)。

発光時定数

液体シンチレータの発光は時間応答に広がりを持つ。本研究では発光を二成分で測定しており、その時の発光時間分布は

$$T(t) = \sum_{i=1}^2 \frac{A_i}{\tau_i} e^{-\frac{t}{\tau_i}} \quad (7.1)$$

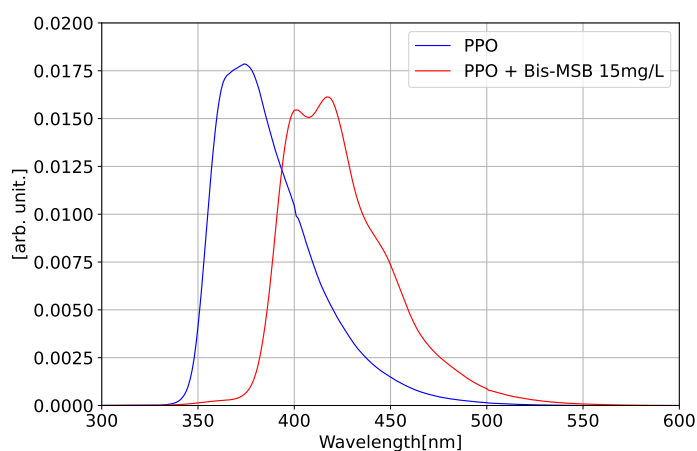


図 7.3 LS の蛍光スペクトル。青:PPO のみの発光波長、赤:PPO+Bis-MSB の発光波長。面積で規格化している。

各サンプルにおいて使用したデータを表 7.1 に示す。なお KamLAND-LS においては Xe を導入しないため Xe なしの状態のみ測定を行っている。KLG4 に組み込む場合は式 (5.5) にそってパラメータを指定する必要があるが、本研究では PMT の T.T.S も考慮して式 (5.4) でフィットを行っている。式 (5.4) でフィットした時のパラメータを使用することにする。

表 7.1 LAB based-LS タイムスペクトルパラメーター比較

サンプル	Xe	A_1 [%]	A_2 [%]	τ_1 [ns]	τ_2 [ns]
KamLAND-LS	w/o	93.2	6.8	6.161	47.44
N10-LS + Bis-MSB	w/o	85.7	14.3	4.056	18.52
	w/	83.6	16.4	3.735	18.23
LAB based-LS	w/o	87.8	12.2	5.991	33.12
	w/	87.7	12.3	5.261	29.63

発光量

発光量に関しては、KLG4 に登録されている KamLAND-LS の発光量 8499 p.e./MeV を 1 として本研究の 4 章の測定結果を適用した。

減衰長

KLG4 においては、透過率ではなく減衰長でデータを登録する必要がある。このデータにおいては 6 章において測定したデータを使用した (図 6.15)。ここではインナバルーンに導入する LS は w/ Xe の場合をインナバルーンの外側は w/o Xe の場合の値を使用した。

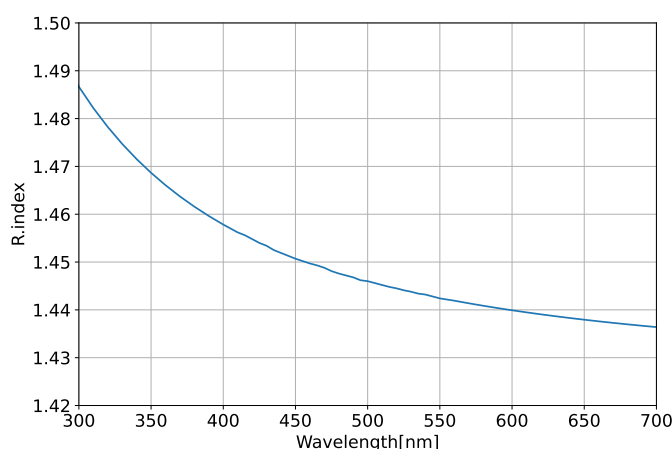


図 7.4 KLG4 で使用されている KamLAND-LS の屈折率

屈折率

屈折率は KamLAND-LS のデータは登録済みのデータを使用した (図 7.4)。また、その他のサンプルにおいては 3.2 節で測定したデータを使用した (3.9, 3.8)。今回は全て w/o Xe の値を使用している。しかし、Xe を溶解すると密度が増加するため少なからず屈折率が変化することを考慮する必要があるが、Xe 含有状態での屈折率測定が現在不可能であるため w/o Xe の値を使用する。

再発光確率

光学シミュレーションを行うためには液体シンチレータの各波長における再発光確率を求める必要がある。PPO のみの再発光確率は KLG4 に登録されているものを、PPO+Bis-MSB の再発光確率は先行研究 [36] のデータを使用した (図 7.5)。後者の PPO+Bis-MSB による再発光確率は未測定であり、誤差も不明であるため、今後さらに詳細なシミュレーションを行う際は注意が必要である。

PEN フィルム

減衰長は、先行研究 [32] における $25 \mu\text{m}$ の透過率から減衰長を算出した。また、再発光確率は [52] のデータを参考にして最大値が 57% になるようにデータを規格化して導入した。今回は PEN の透過率及び吸収再発光のみ考慮したためその他のパラメータについては追加していない。

7.1.6 シミュレーション条件

シミュレーションに際して、発光は 2.6 MeV の γ 線による発光を考えた。これは検出器などから発生する RI としてトリウム系列の ^{208}Tl の崩壊で発生する γ 線のエネルギーとした。発生位置に関しては、場合ごとに変えているためその都度説明する。

また、検出光量については検出光量のヒストグラムでガウシアンフィットを行った時の中心値

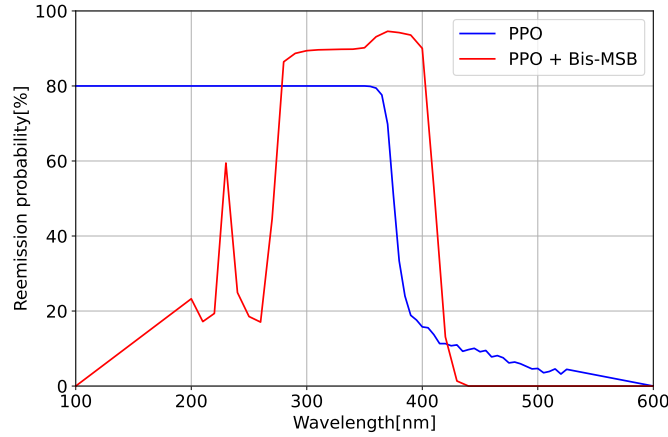
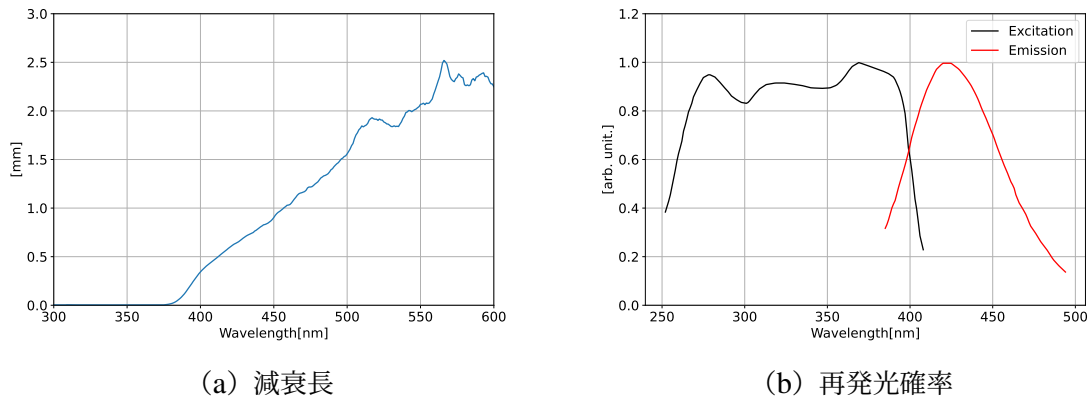


図 7.5 PPO と PPO+Bis-MSB の再発光確率 [36]。



(a) 減衰長

(b) 再発光確率

図 7.6 使用した PEN の光学パラメータ

を採用している。

7.2 シミュレーションによる減衰長測定の評価

まず初めに 6 章で測定した減衰長の誤差評価を行った。図 7.7 の KamLAND-LS の減衰長において、平均値と誤差を考慮した時の最大値・最小値の値を KamLAN 検出器のミニバルーン外側部分の透過率に導入した。その他の特性は同じものを使用している。

γ 線の発生点としては、検出器中心で 10,000 個発生させている。結果は図 7.8, に示す。平均値の値を ave、誤差を含めた最大値を max、誤差を含めた最小値を min として表示している。

以上より検出光量 (LY) は、

$$LY = LY_{\text{ave}}^{+16.0}_{-13.5} [p.e.] \quad (7.2)$$

となった。これは、 LY_{ave} から $-2.1\% - +2.5\%$ の範囲となる。KamLAND 検出器のエネル

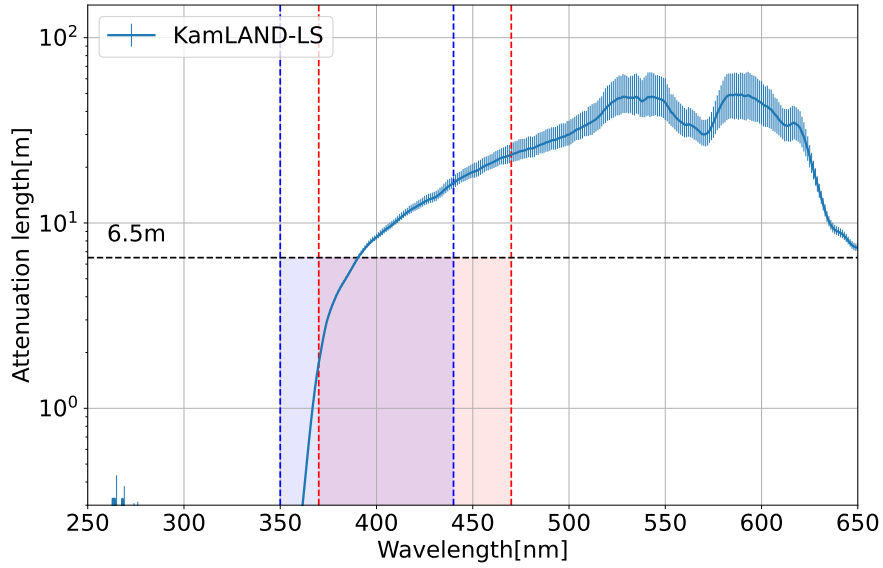


図 7.7 KamLAND-LS の減衰長

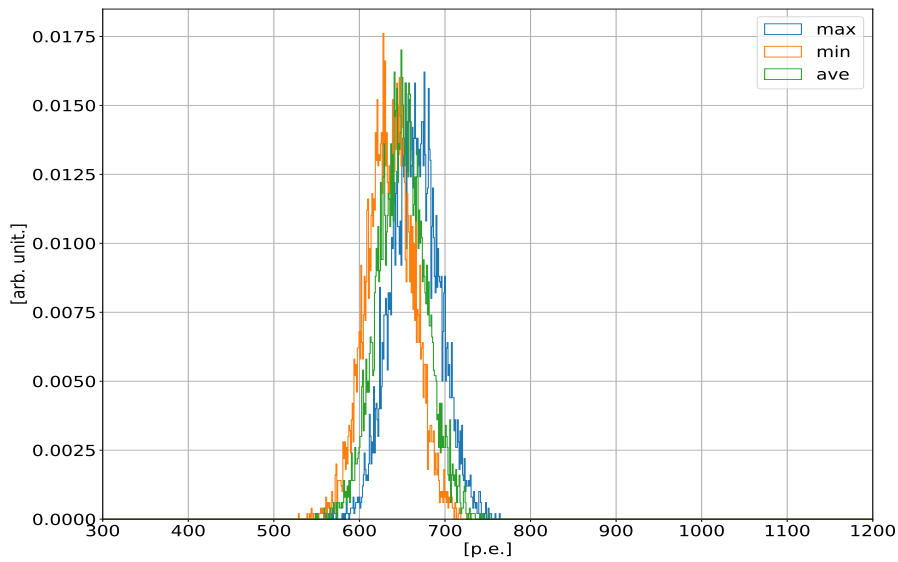


図 7.8 KamLAND-LS の減衰長を変えた時の検出光量

表 7.2 KamLAND-LS の減衰長を変えた時の検出光量

	min	ave	max
LY[p.e.]	636.4 ± 0.2	649.9 ± 0.2	665.9 ± 0.2

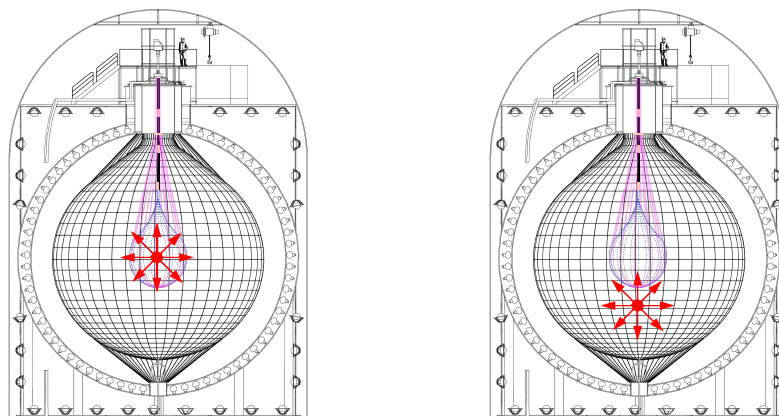


図 7.9 γ 線の発生点概念図。左図: 中心での発生、右図: 中心点から下方向に 2.5 m 離れた点での発生。

ギー分解能は $6.4\%/\sqrt{E[\text{MeV}]}$ となっており、今回の減衰長誤差による検出光量の誤差 2% 程度は分解能の範囲内であり、今回のシミュレーションにおいては大きな影響を与えず、検出光量を評価するにあたっては十分な大きさの誤差であるとした。次節以降の検出光量において、減衰長はそれぞれのサンプルの平均値を使用することにする。

また、今回は KamLAND-Zen800 の検出器セットアップからどれだけ検出光量が変わるかの相対値で評価を行う。その時の基準はここでの減衰長の平均値を使用した時の値 649.9 p.e. を基準として評価する。

7.3 LS への Bis-MSB の追加

KamLAND2-Zen 実験では PEN フィルムの導入が予定されており、PEN フィルムを透過する波長で発光させるために波長変換剤 Bis-MSB の導入が予定されている。まずは、PEN フィルムを導入する前に現在のセットアップでミニバルーン内 (IB) に Bis-MSB を追加もしくは、ミニバルーン内とミニバルーン外 (IB+OB) に Bis-MSB を追加した時の検出光量についてシミュレーションを行った。

発生点は二種類に分けた。一つ目は、検出器中心での発光である。二つ目は中心点から 2.5 m 離れたミニバルーンの外側での発光である (概念図 7.9)。

7.3.1 ミニバルーン内での発光

まずは中心での発光を考えた。結果は図 7.10 と表 7.3 に示す。また、表の値は相対検出光量を示している。

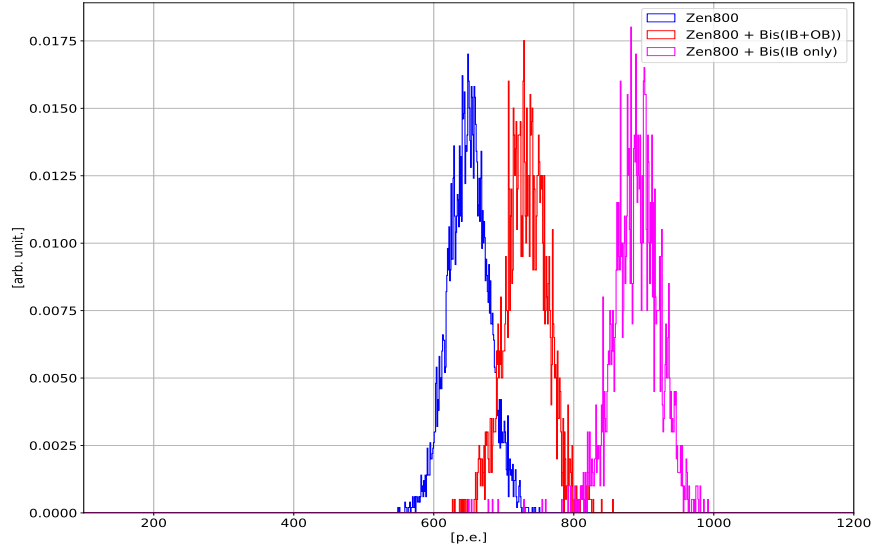


図 7.10 KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)。青: 現在の Zen800 のセットアップ、マゼンタ:Zen800 において IB にのみ Bis-MSB を加えたもの、赤:Zen800 において IB と OB に Bis-MSB を加えたもの。

表 7.3 KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)

Bis-MSB	LY_{relative}
IB only	1.37
IB+OB	1.13

Based on Zen800 setup

7.3.2 ミニバルーン外での発光

次にミニバルーンの外での発光を考えた。結果は図 7.11 と表 7.4 に示す。また、表の値は相対検出光量を示している。

7.3.3 結果と考察

まず中心点での発光について、ミニバルーン内のみ **Bis-MSB** を導入した場合発光量が変化しない場合でも検出光量が従来の 1.37 倍に増加する (図 7.1(b))。これは、中心の発光波長領域が従来よりも長くなったことで外側 OB の KamLAND-LS を透過していく光量が増えたことによるものであると考えられる。

外側での発光については、IB+OB に Bis-MSB を追加した場合に従来の 1.24 倍 (図 7.1(c)) に

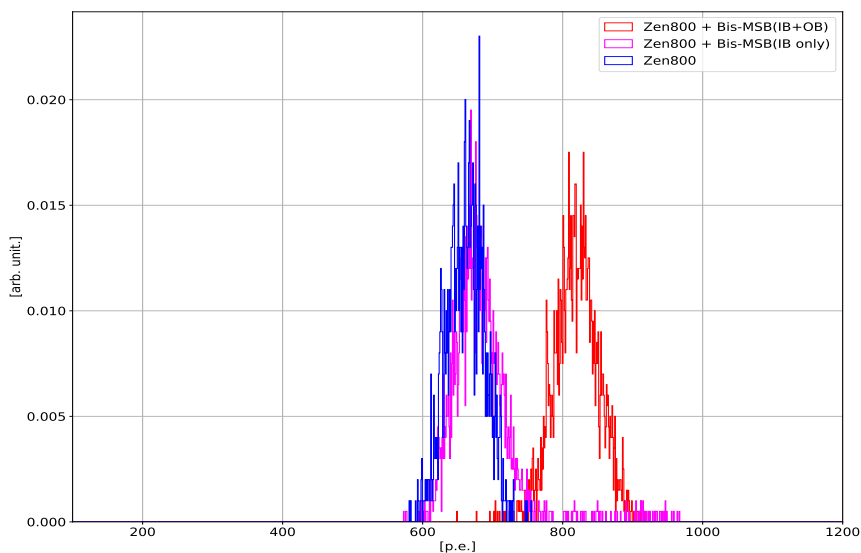


図 7.11 KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)

表 7.4 KamLAND-Zen800 に Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)。青: 現在の Zen800 のセットアップ、マゼンタ:Zen800 において IB にのみ Bis-MSB を加えたもの、赤:Zen800 において IB と OB に Bis-MSB を加えたもの。

Bis-MSB	LY_{relative}
IB	1.02
IB+OB	1.24

Based on Zen800 setup

なることがわかる。これは、外側の発光波長領域が長くなることで、減衰長が長い部分の発光となることでより長い距離に光が届くためであると考えられる。

これらのことより、もしミニバルーン内での発光のみ ($0\nu\beta\beta$ 崩壊探索) に特化したセットアップにする場合ミニバルーンのみ Bis-MSB を導入することが考えられる。しかし、外側の発光を考える場合は光量が従来とほぼ同等という結果になる。

7.4 PEN フィルムの導入

KamLAND2-Zen 実験で使用予定の PEN フィルムを導入した際の検出光量についてもシミュレーションを行った。今回は、光学特性として減衰長と吸収再発光確率のみを考えることにする (図 7.6)。ここでも、中心での発光とミニバルーン外側での発光についてシミュレーションを行った。

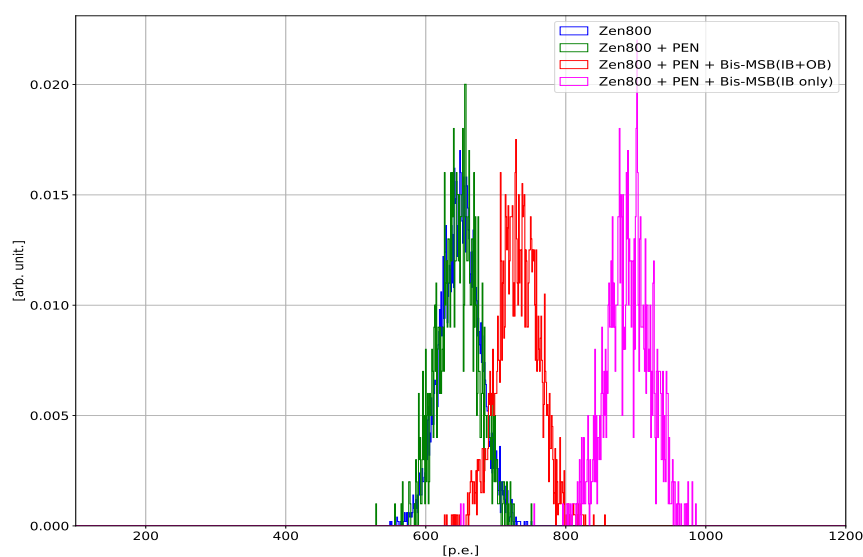


図 7.12 KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)。青: 現在の Zen800 のセットアップ、緑: Zen800 において PEN フィルムを追加したもの、マゼンタ: Zen800 において PEN フィルムを追加し、IB へのみ Bis-MSB を加えたもの、赤: Zen800 において PEN フィルムを追加し、IB と OB に Bis-MSB を加えたもの。

7.4.1 ミニバルーン内での発光

表 7.5 KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (中心での発光)

	LY_{relative}
Zen800+PEN	0.99
Zen800+PEN + Bis-MSB (IB only)	1.37
Zen800+PEN + Bis-MSB (IB+OB)	1.24

Based on Zen800 setup

7.4.2 ミニバルーン外での発光

7.4.3 観測波長の確認

PMT に到達した時の波長分布を図 7.14 に示す。

PEN フィルムを追加することで、フィルムの透過率に沿って波長が長波長側にシフトしていることわかる。これは PEN の透過率の効果と吸収再発光の効果によるもので、波長分布の横への広

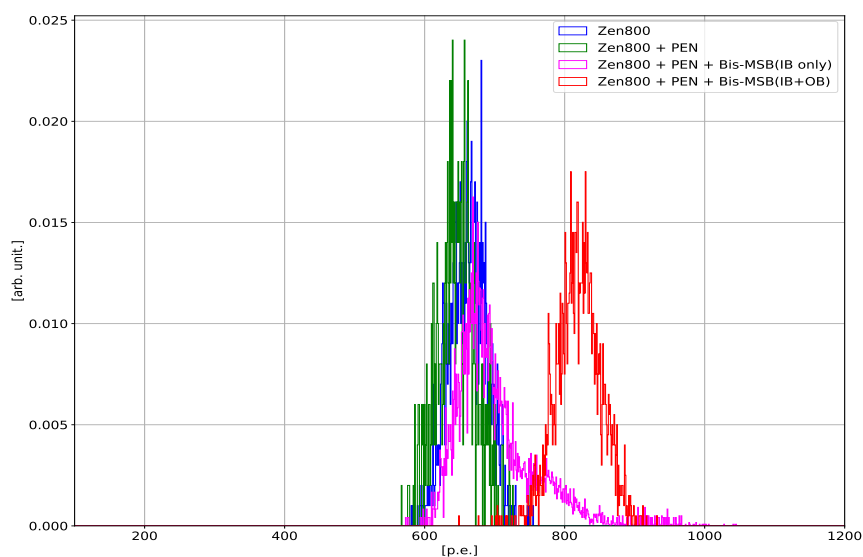


図 7.13 KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)。青: 現在の Zen800 のセットアップ、緑: Zen800 において PEN フィルムを追加したもの、マゼンタ: Zen800 において PEN フィルムを追加し、IB にのみ Bis-MSB を加えたもの、赤: Zen800 において PEN フィルムを追加し、IB と OB に Bis-MSB を加えたもの。

表 7.6 KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)

	LY_{relative}
Zen800+PEN	0.98
Zen800+PEN + Bis-MSB(IB only)	1.03
Zen800+PEN + Bis-MSB(IB+OB)	1.24

Based on Zen800 setup

がりが大きくなっていることもわかる。

7.4.4 PEN フィルムの厚さによると検出光量評価

導入予定の PEN フィルムについて、厚さは現段階で確定していない。現在の KamLAND-Zen800 実験ではミニバルーンの材質としてナイロンフィルムを使用しており、厚さは $25 \mu\text{m}$ である。

PEN フィルムを導入する際に同様の厚さではない可能性があるため厚さによる検出光量にどれだけ影響するか比較した。

PEN フィルムの厚さは $25, 50, 100 \mu\text{m}$ の 3 パターンにおいて、IB にのみ Bis-MSB を導入し

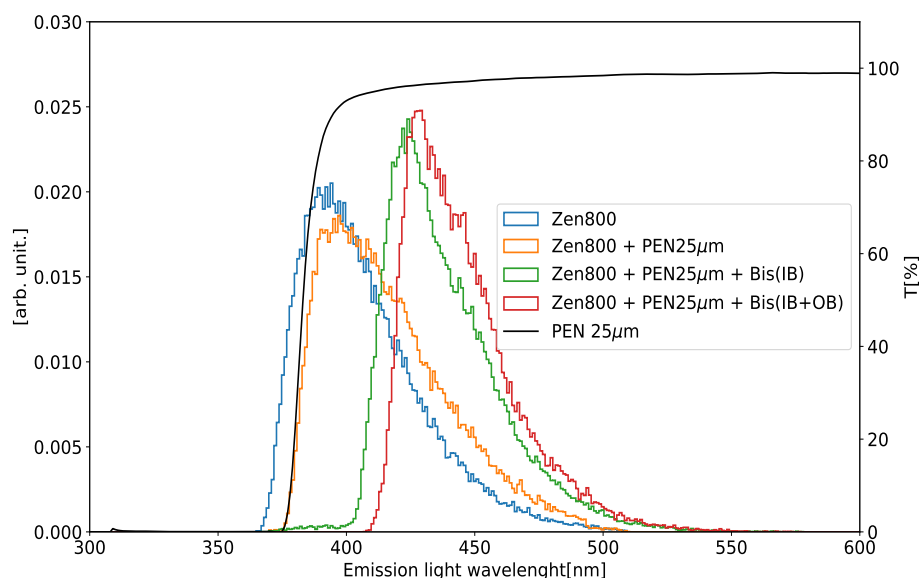


図 7.14 PMT で検出された光の波長分布 (中心での発光)

て中心で γ 線を発生させた。結果は図 7.15, 表 7.7 に示す。

表 7.7 KamLAND-Zen800 に PEN フィルムと Bis-MSB を加えた時の検出光量 (ミニバルーン外での発光)

PEN の厚み [μm]	LY_{relative}
25	1.37
50	1.30
100	1.24

Based on Zen800 setup

PEN の厚さを変えることで発光量の減少が見られた。厚さを倍にすることで検出光量が 5% 程度減少するとがわかる。

7.4.5 結果と考察

まず KamLAND-Zen800 に PEN フィルムのみを追加した場合を見ると、透過率が PPO 発光波長領域よりも多少長い位置にあるにもかかわらず、検出光量が 1% 減とさほど変わらない結果になった (透過率だけによる検出光量の減少の確認は付録 D に示す)。これは PEN フィルムが吸収再発光を起こしており、その再発光の波長のピークが 420 nm 程度であり、OB で減衰長がより長い部分での発光になっていることが理由だと考えられる。PEN フィルムの量子効率 [52] は不定性が大きく、最大値で $57 \pm 7\%$ という誤差がついているがこれによる誤差は KamLAND のエ

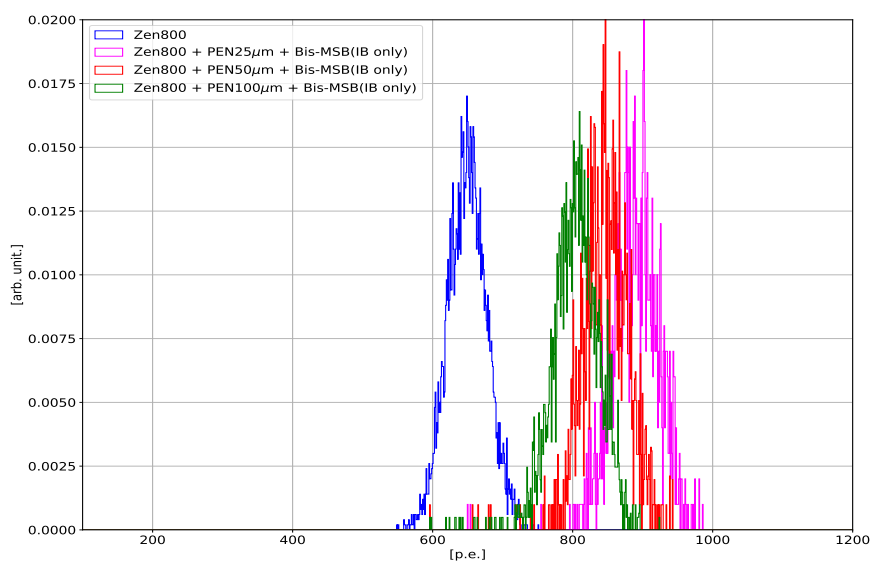


図 7.15 PEN フィルムの厚さによる検出光量の変化 (中心での発光)

エネルギー分解能よりも小さくなっており今回は 57% を使用して問題ないとした (詳細は付録 D)。しかし、実際に使用する予定の PEN フィルムのさらなる光学特性の測定は必須である。

また、厚さに関しても考慮する必要がある。現在のミニバルーンフィルム $25 \mu\text{m}$ から厚くすると検出光量に顕著な減少が見られる。したがって PEN フィルムを導入する際には出来る限り薄くする必要がある。これについては、7.6 節で追加の説明を行う。

7.5 LAB の導入による発光量の変化

新液体シンチレータの候補である LAB ベースのサンプルについてもシュミレーションをおこなった。大発光量である液体シンチレータでどれほど検出光量に影響があるか確認した。

表 7.8 LAB based-LS での検出光量 (中心での発光)

	LY_{relative}
LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB only)	1.66
LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB+OB)	1.31

Based on Zen800 setup

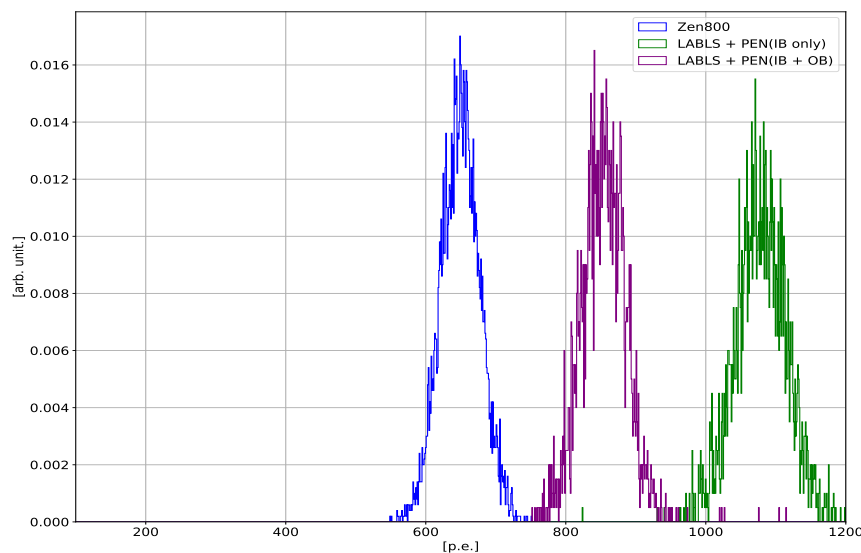


図 7.16 LAB based-LS での検出光量 (中心での発光)。青:Zen800 のセットアップ、緑:Zen800 のジオメトリに LAB based-LS を加えたもの (Bis-MSB は IB のみ)、紫:Zen800 のジオメトリに LAB based-LS を加えたもの (Bis-MSB は IB と OB)。

7.5.1 結果と考察

LAB を導入した結果、ミニバルーン内のみならず Bis-MSB を追加した場合検出光量が現行の KamLAND-Zen 実験の 1.66 倍 (図 7.1(d)) となり目標である 1.4 倍を大きく上回っていることがわかる。外側にも Bis-MSB を入れた場合においても 1.31 倍 (図 7.1(e)) と非常に検出光量が大きくなっている。これらは大発光量・高透過率によるものである。

しかし、密度調整という問題がある。現在 KamLAND 検出器においてミニバルーン内に Xe を溶かしこむと、インナーバルーン内の液体シンチレータの密度が大きくなりバルーンが密度差に耐えきれず破損してしまう可能性がある。それを補うためにインナーバルーン内の液体シンチレータには密度の低い N10(Decan) を使用して密度調整を行なっている。

しかし、LAB をベースとした液体シンチレータではその方法が確立していない。それは、成分である PC と LAB の密度が高いためである。ミニバルーン内の LAB based-LS に Xe を溶解した場合、ミニバルーンの外側に LAB based-LS 以上の密度を持つ液体シンチレータを導入する必要があるが、今はその候補がない状態である。また、アウターバルーンの外に満たされている無発光のバッファオイルに関しても同程度の密度のものに変更する必要がある。

もし、LAB が使用可能となった場合でも密度の問題が解決していないため、簡単には導入できないのである。対処法としてはバルーンに使用する素材を圧力に耐えられる素材にするなどが挙げられるが候補などの詳細はまだできておらず、この点を解決する必要がある。

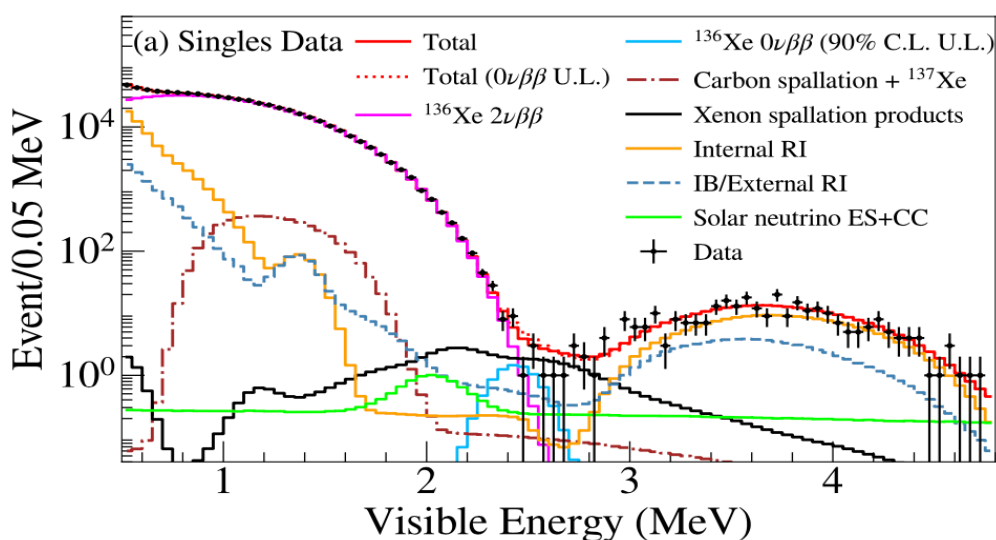


図 7.17 KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル ($0\nu2\beta$ candidate data set)

7.6 高量子効率 PMT と集光ミラーの導入による $0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の分解能評価

KamLAND-Zen 実験の主要なバックグラウンドとして前述の通り ^{136}Xe の $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象がある。実際、現在の KamLAND-Zen800 実験で得られたエネルギースペクトル図 7.17 を見てみると、 $0\nu\beta\beta$ のスペクトル部分に $2\nu\beta\beta$ のスペクトルが非常に染み出していることがわかる。

対策としてエネルギー分解能 $[\%/\sqrt{E[\text{MeV}]}]$ を改善することが必要であり、検出光量が増加するとその 1/2 乗に比例して分解能が小さくなる。ここでは、液体シンチレータの変更に加えて高量子効率 PMT と集光ミラーを導入することで検出光量を見積り、分解能がどれほど改善するか見積もる。

7.6.1 高量子効率 PMT と集光ミラーの導入

前述の液体シンチレータの変更・PEN フィルムの追加による光量変化に加えて、高量子効率 PMT と集光ミラーの導入の特性を追加する。

条件としては、中心で γ 線を発生させた場合を考え、中心部分にのみ Bis-MSB を加えた場合、検出器全体に Bis-MSB を加えた場合のセットアップでシミュレーションを行う。PEN フィルムに関しては厚さによる変化は検証済みであるため今回は $25\ \mu\text{m}$ と仮定する。

サンプルに関しては N10-LS+Bis-MSB の場合と LAB based-LS の場合を考える。

シミュレーション結果は図 7.18, 表 7.9 に示す。

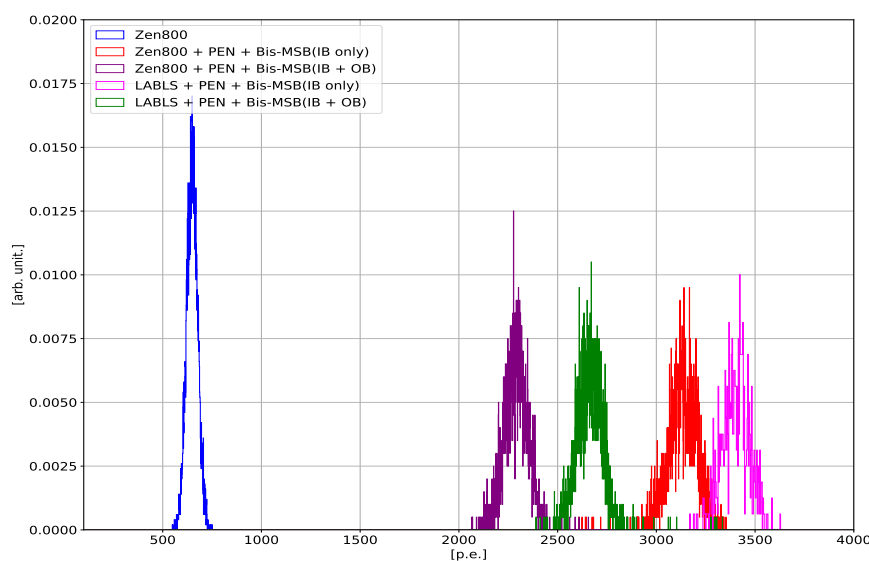


図 7.18 高量子効率 PMT と集光ミラーの導入した時の検出光量 (中心での発光)。青:Zen800 のセットアップ (高量子効率 PMT と集光ミラーの導入前)、赤:Zen800 に PEN と Bis-MSB(IB) を加えたもの、紫:Zen800 に PEN と Bis-MSB(IB と OB) を加えたもの、マゼンタ: 赤において LS を LAB based-LS に変えたもの、緑: 紫において LS を LAB based-LS に変えたもの。

表 7.9 高量子効率 PMT と集光ミラーの導入した時の相対検出光量 (中心での発光)

	LY _{relative}
Zen800 + PEN + Bis-MSB(IB only)	4.82
Zen800 + PEN + Bis-MSB(IB+OB)	3.53
LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB only)	4.14
LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB+OB)	5.24

Based on Zen800 setup

それぞれの LS において IB のみに Bis-MSB を加えた時、検出光量が、4.82 倍 (図 7.1(b)), 5.24 倍 (図 7.1(b)) になることがわかった。この値を用いて $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象のエネルギースペクトルの染み出し具合を評価する。

7.6.2 $0\nu\beta\beta$ 崩壊事象の分解能評価

$0\nu\beta\beta$ 崩壊イベントへの $2\nu\beta\beta$ 崩壊イベントの重なり $N_{2\nu\beta\beta}$ について評価する。今回は $0\nu\beta\beta$ と $2\nu\beta\beta$ の二つの事象についてのみ考え、エネルギースペクトルデータに対してエネルギー分解能を考慮して広がりをつけた状況で関心領域 ROI に入ってくる $2\nu\beta\beta$ 崩壊イベントどれほど減るか評価した。

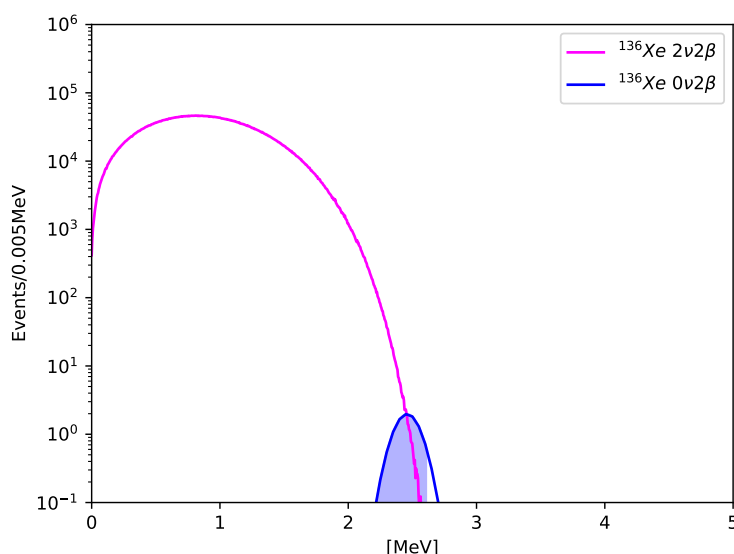


図 7.19 エネルギー分解能 $6.4\%/\sqrt{E[\text{MeV}]}$ でのエネルギースペクトルの重なり

現在の KamLAND では ROI を 2.35-2.70 MeV としている。6.4% の分解能の場合 (図 7.19)、 $0\nu\beta\beta$ エネルギースペクトルにフィットしたガウシアンにおいて中心から $-1.1\sigma - +2.4\sigma$ となった。以降分解能が小さくなった場合においてもこの範囲で $N_{2\nu\beta\beta}$ の変化を評価する。

表 7.9 のデータからエネルギー分解能と $N_{2\nu\beta\beta}$ についてまとめたものを表 7.10、エネルギースペクトルは図 7.20 に示す。 $N_{2\nu\beta\beta}$ は分解能 6.4% の場合を 1 としている。

表 7.10 検出光量増加による分解能の変化

	LY _{relative}	分解能 [%]	$N_{2\nu\beta\beta}$ (relative)
Zen800 + PEN + Bis-MSB(IB only)	4.82	2.92	0.011
Zen800 + PEN + Bis-MSB(IB+OB)	3.53	3.41	0.031
LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB only)	5.24	2.80	0.010
LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB+OB)	4.09	3.16	0.019

Based on Zen800 setup

7.7 結果と考察

新液体シンチレータ、高量子効率 PMT、集光ミラーを導入した結果 LAB based-LS を使用し、インナーバルーンにのみ Bis-MSB を導入した場合 (IB only)、現在の KamLAND に比べて、 $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象の ROI への染み出し $N_{2\nu\beta\beta}$ は表 7.10 を見ると最大で 1.0% になると見積もられた。費用の面を考慮して現行の KamLAND-Zen800 実験の液体シンチレータを再利用した N10-LS

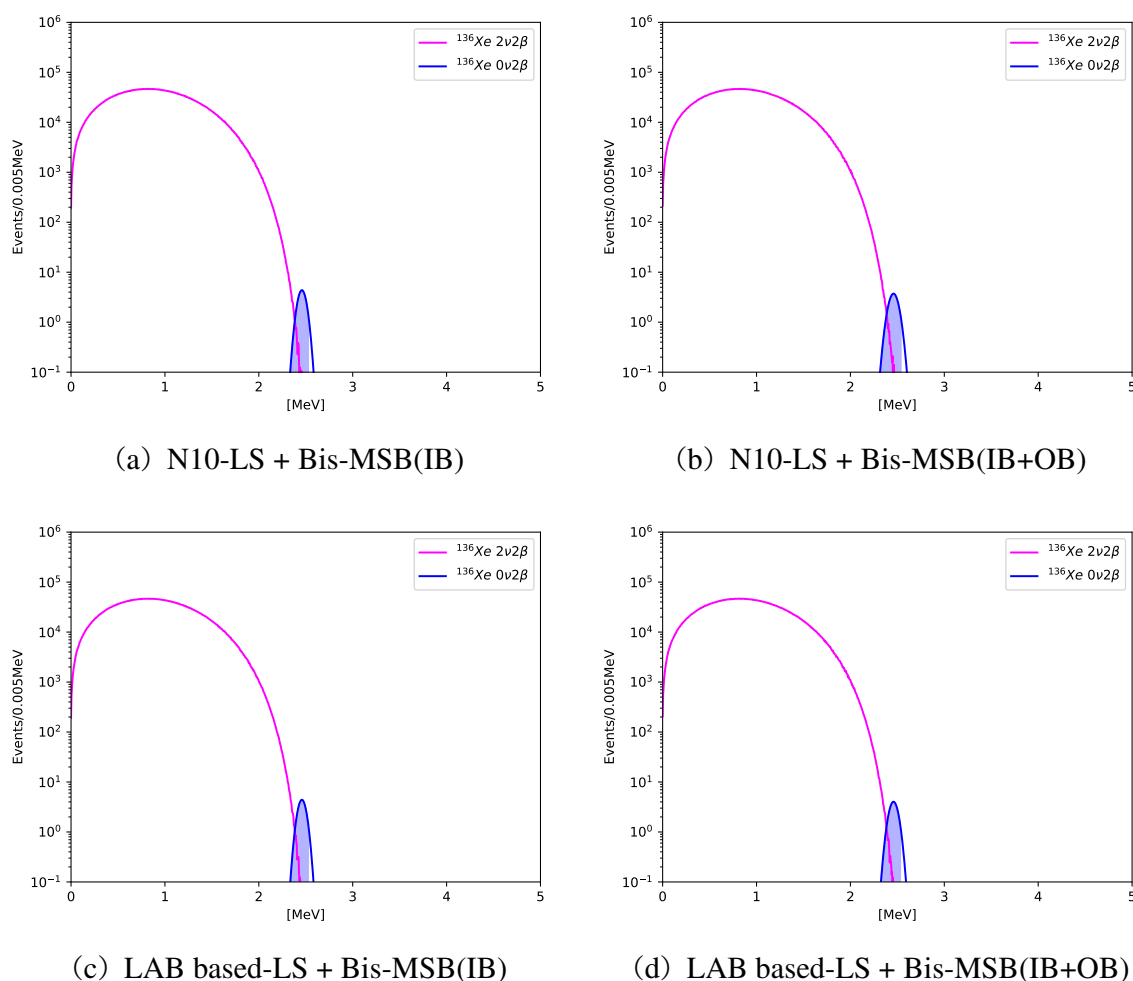


図 7.20 シミュレーションによって得られた分解能向上によるエネルギースペクトルの重なり

においては 1.1% という結果になっている。また、中心部分だけでなくインナーバルーンの外側にも Bis-MSB を導入した場合 (IB+OB)、 $N_{2\nu\beta\beta}$ は表 7.10 を見ると 2-3% 程度になるという結果となった。実際、従来の分解能の場合 (図 7.19) と比べて図 7.20 を見ると $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象の染み出しが非常に少なくなっていることがわかる。これ以上の検出光量の増加としては発光量のさらなる増加などが挙げられるが、本研究ではその対策として PPO の増量という案をとっており、現在の PPO 2.7 g/L から 4.0 g/L まで増量することで光量が 10% 程度増加するため一つの案として考えられる。

$0\nu\beta\beta$ 崩壊探索にあたって、インナーバルーン内の発光を考えた際はインナーバルーン内のみに Bis-MSB を導入する方が検出光量としては非常に良い性能を示すことがわかった。

分解能についてはさらなる考察が必要である。2 章でも述べたように、Xe 原子核破碎事象のバックグラウンドの除去も必要不可欠である。将来的な計画として、機械学習を用いた粒子識別による除去が可能になるとされている。KamNet と呼ばれる、KamLAND のような球形検出器の特徴を活かすような深層ニューラルネットワークを使用することになる。ここでは、2次元の

PMT ヒットマップ画像データを拡張することでさらなる粒子識別に活用している。現在は Xe 原子核破碎バックグラウンドに対して 27% 除去が可能である。これにより、高感度体積の向上が見込まれている。

また、この粒子識別において検出光量が増加すると性能が著しく増加することがわかっている。したがって、今回のシミュレーションによる検出光量が現在の KamLAND に比べて、表 7.11 の組成では 4.82 倍、表 7.12 の組成では 5.24 倍という情報は非常に重要なデータとなる。

表 7.11 Zen800 + PEN + Bis-MSB(IB only) の LS 組成

IB		OB	
PC	17.7%	PC	20%
N10	82.3%	N12	80%
PPO	2.7 g/L	PPO	1.36 g/L
Bis-MSB	15 mg/L		

表 7.12 LAB based-LS + PEN + Bis-MSB(IB only) の LS 組成

IB		OB	
PC	20%	PC	20%
LAB	80%	LAB	80%
PPO	2.0 g/L	PPO	2.0 g/L
Bis-MSB	15 mg/L		

第 8 章

結論と今後の課題

8.1 結論

本研究では、KamLAND2-Zen で使用する候補の新 LS において諸光学特性及び Xe 含有時の光学特性 (発光量・発光時定数・透過率) の測定を行い、Xe による発光への影響を考察した。現段階の組成では Xe を溶解することで発光量が 13~20% 減少することがわかった。その対策として現在考えられるのは第一発光溶質である PPO を増加させることであり、PPO 量は 4.0-4.5 g/L 付近で発光量は飽和することがわかった。増加させることで、Xe 含有時の発光量が KamLAND-LS の 1.07 倍 (N10-LS+Bis-MSB) もしくは 1.33 倍 (LAB based-LS) になることがわかった。最終的には KamLAND のサイズで検出光量 1.4 倍を目標としている、これを達成するためにはインナーバルーン内にものみ Bis-MSB を導入することで検出光量が現行の KamLAND-Zen 実験と比べてそれぞれ 1.37 倍 (図 7.1(b))、1.66 倍 (図 7.1(d)) まで増加することがわかった。

発光時定数に関しては、Xe を溶解させることで時定数が短くなり発光の速い成分の割合が小さくなることがわかった。これが発光量減少に影響しているのではないかと考えた。

さらには、測定したデータ、KamLAND2-Zen 実験での改良点を考慮してシミュレーションすることで $0\nu\beta\beta$ 崩壊事象のエネルギー範囲におけるバックグラウンドである $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象の染み出しについて評価した。L インナーバルーン部分のみに波長変換剤である Bis-MSB を導入することで、分解能が向上し染み出しが従来の 1.0%(LAB based-LS)、1.1%(N10-LS+Bis-MSB) まで減少するという結果を出した。本研究では、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索においてインナーバルーン内での発光を考えると、インナーバルーン内にものみ Bis-MSB を導入した場合が検出光量を最大化でき、現状従来の検出光量の 4.82 倍 (N10-LS+Bis-MSB, 表 7.11)、5.24 倍 (LAB based-LS, 表 7.12) 程度まで増加すると結論づけた。

8.2 今後の課題

今後の課題としては、LS の密度調整やシミュレーションによる感度の評価、PID による粒子識別、試料含まれる極微量放射性元素の測定・純化などが挙げられる。もし LAB をベースとした LS を使用する場合インナーバルーンの内側と外側で Xe を溶解している分の密度調整をする

手段が未だ考えられていない。現在使われている N10 ベースの LS に Bis-MSB を加える場合には、3 章でも述べたように密度に与える影響は $+10^{-5}\text{g/cm}^3$ 程度となっておりほぼ無視できる量である。

またシミュレーションについては分解能だけでなく感度についても評価が必要であり、より複雑なシミュレーション・粒子識別手法の確率が必要である。前述の通り、検出光量増加による PID 性能の向上についてもさらなる評価が今後の課題である。

試料含まれる極微量放射性元素の測定・純化については、先行研究 [53] でも行われているように Bis-MSB に含まれる ^{238}U , ^{232}Th 量の高感度測定、純化方法の確立も必要になってくる。

付録 A

発光量測定

発光量測定は、 ^{137}Cs の γ 線によるコンプトン散乱の後方散乱と発光の遅延同時計測によって行なった。

γ 線と物質の相互作用は 3 つに分類され、 γ 線のエネルギーや相互作用する物質によって

- 光電効果
- 電子陽電子対生成
- コンプトン散乱

に分けられる。

例えば、 γ 線のエネルギーが比較的小さく物質の原子量が大きい場合は光電効果、 γ 線のエネルギーが 1.022 MeV を超える場合には電子陽電子対生成が支配的になる。今回は ^{137}Cs を使用しており、崩壊時の γ 線のエネルギーは 662 keV である。また、標的の物質は液体シンチレータであり水素と炭素が主である。このように γ 線のエネルギーが比較的小さく、物質の原子量も小さい場合にはコンプトン散乱が支配的になる。

コンプトン散乱では、 γ 線が電子にエネルギーを与えることでさまざまな角度に散乱する。この時 γ 線のエネルギー E_γ 、電子の静止質量を m_e とした時、エネルギー保存則・運動量保存則を用いて、 γ 線が角度 θ に散乱する時の電子のエネルギー E_e は以下の式 (8.1) のようになる。

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{1+m_e c^2} \cos\theta} \quad (8.1)$$

ここで、 $\theta = 180^\circ$ の時 (後方散乱) は、反跳電子のエネルギーが最大となり、コンプトンエッジと呼ばれる。 ^{137}Cs を使用した場合は、 γ 線のエネルギーは 662 keV で、コンプトンエッジは 477 keV となり、この時後方散乱した γ 線は 185 keV となる。

実際の測定においては、液体シンチレータの発光を 2 インチ PMT (浜松ホトニクス社製)、後方散乱した γ 線を NaI シンチレータで検出して 2 つの信号の遅延同時計測をとることで測定した。データの取得には FADC, DT5751 (CAEN 社製) 1 ギガサンプリングを使用した (概念図 8.1)。

DT5751 でのデータ取得では、波形を取得しその波形を積分することで電荷 (Q) を求めている (図 8.2)。

この Q のヒストグラムをガウシアンでフィットしてその mean 値を発光量としている。このと

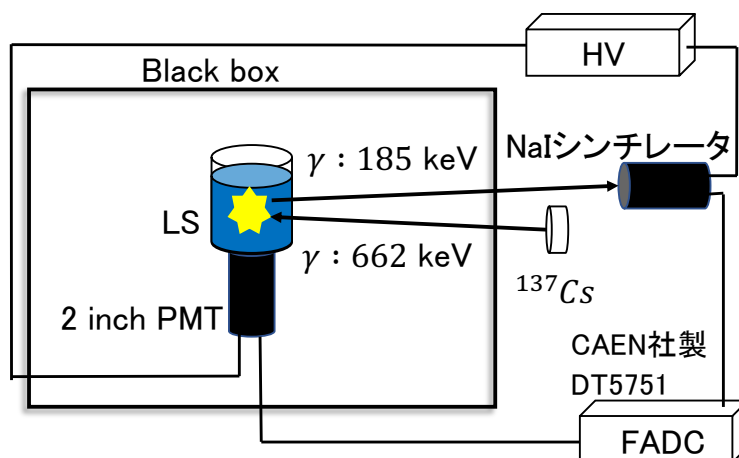


図 8.1 発光量測定のご概念図

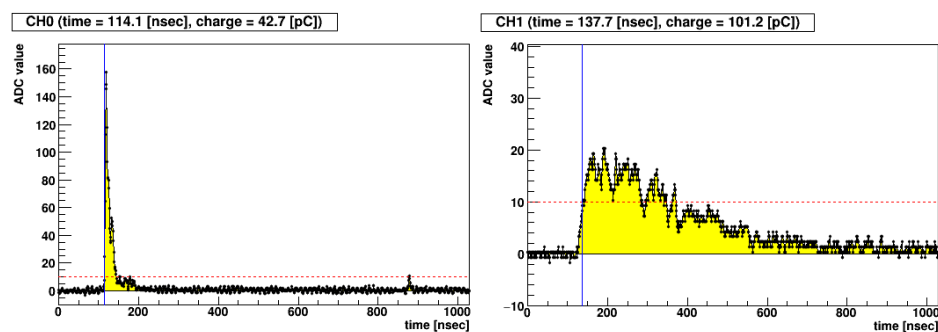


図 8.2 FADC, DT5751 での波形取得

きカットの条件として、時間差と NaI の Q のヒストグラムのピーク位置でカットをかけている。実際に測定して解析を行った例が図 8.3 である。

測定の誤差について

発光量測定をするにあたって、考えられる誤差は 3 つある。

- FADC など装置のエネルギー分解能によっておきる誤差
- サンプルを作成する際の試料の計量によっておきる誤差
- フラスコの底面にオプティカルグリースを塗って PMT に設置することによっておきる誤差

この測定の誤差の大部分を占めるのは、人為的なものである。先行研究 [54] では 1.6% と見積もられているが、本測定はセットアップを変更したり、オプティカルグリースを使用するなど変更点があるため新たに誤差を見積もった。

誤差の見積もりについて、今回は簡易的な方法で行った。方法としては、同組成のサンプルを 3 つ作成しそれぞれにつき 8 回計 24 回測定を行い、その測定値の標準偏差を出すことで誤差を見積

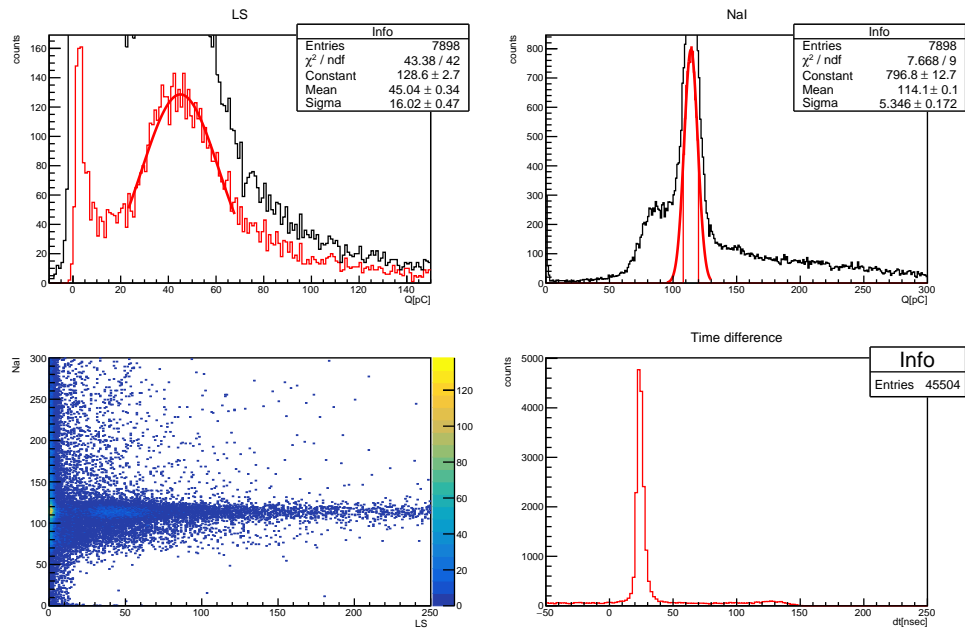


図 8.3 発光量解析図例

もった。この誤差は、簡易的ではあるが上記3つの誤差を含んだ誤差になっている。

実際測定を行った結果、誤差は1.6%となり、先行研究と同様の結果となった。今後の測定の誤差は1.6%として測定を行う。

付録 B

1 p.e. カウンティング

光電効果により発生する光電子は式 (8.2) のようなポアソン分布をしている。

$$P(k) = \frac{m^k}{k!} \exp(-m) \quad (8.2)$$

ここで、 k は確率変数、 m は母集団である。この時、1 フォトンのイベントが計数率 1% であるときはほぼ全てのイベントが 1 フォトンのイベントであると言える。セットアップを作りにあたって、計数率が 1% 以下になるよう Stop 側の穴の大きさを調整している。図 5.1 に概略図を示している。

PMT

本研究では、2 つの PMT を使用している。Start 側には R13089(浜松ホトニクス社製)、Stop 側には H7195(浜松ホトニクス社製) を使用している。使用した PMT への要求として、Stop 側は暗電流の低くゲインの高いことを条件とした。暗電流による信号は 1 p.e. でありその割合が多いと実際に検出したい 1 p.e. に影響が出てしまうため、なるべく低いものを選択した。また、1 p.e. の電荷は小さいためゲインが大きいものを使用する方が理想的であり、所有する PMT の中で一番最適なものが H7195 の PMT であった。H7195 の電流とゲインの関係は図 8.4 に示す。これは典型例であり、製品によって個体差がでうるため、参考程度にした。

また、PMT には T.T.S.(電子走行時間) と呼ばれる性能があり、これは入射光が光電面に達してから陽極電流がピークに達するまでの時間です。発光時定数を測定するとこの T.T.S. の分だけ立ち上がりに時間がかかってしまうため、できる限り短い T.T.S. を持つ方が良い。2 つの PMT の T.T.S. をそれぞれ σ_1, σ_2 とした時発光の立ち上がりはこの 2 つの二乗和の平方根 $\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$ となるはずである。

1p.e. キャリブレーション

本測定を始める前にダークカウントによる 1 p.e. キャリブレーションを行った。PMT の性質上、入射面を全て覆っても光が入らなくとも信号が検出される (電流が流れる) ことがある。これは暗電流と呼ばれており、主な原因としては

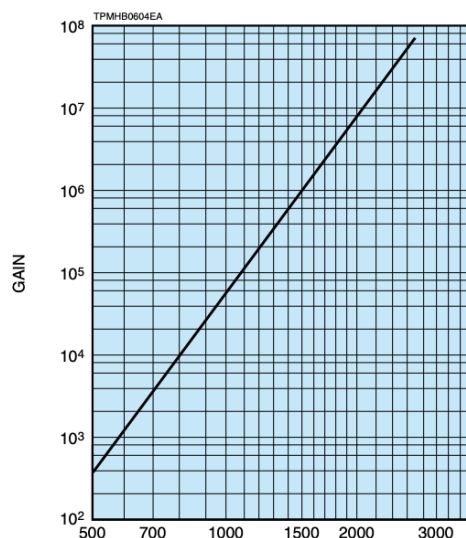


図 8.4 使用した PMT の GAIN [55]

1. 光電面やダイノードからの熱電子放出
2. 漏洩電流
3. 電界放出
4. 光入射面のガラスのシンチレーション
5. 宇宙線や環境ガンマ線

などが挙げられる。この中の熱電子放出は 1 p.e. が放出される。これを利用して 1 p.e. のピークを測定することができる。したがって、図 5.1 の stop 側の PMT において光の入射面を完全に塞いだ状態で測定を行なった。そこで検出されたイベントについてフィットをすることで 1p.e. の測定を行なった。

解析に際して、検出データには PMT のノイズも含まれる。実際のピークはガウシアンによってフィットを行うが、誤差も含めるには誤差関数を加える必要がある。今回は簡単のため指数関数でフィットをしてそれをガウシアンで畳み込んだ関数でフィットを行なった。フィット結果は図 8.5 の通りである。また、1 p.e. イベント付近の波形を重ね合わせたものが図 8.6 である。

右端に立っているピークがノイズであり、その右に出ているのが 1 p.e. のピークでありはっきりピークが見えている。フィットの結果 5.349 pC が 1 p.e. のピークとなる。今後はこの位置を 1 p.e. の値 ($Q_{1\text{p.e.}}$) として考える。

ゲインについて、以下のような関係式が成り立つ。

$$Q_{1\text{p.e.}} = \text{GAIN} \times e(1.6 \times 10^{-19}[\text{pC}]) \quad (8.3)$$

これより、今回使用した Stop 側の PMT の GAIN は 3.3×10^7 となる。今回電圧は -2500 V に設定しており、図 8.4 を見ると -2500 V での GAIN は 4.0×10^7 となっており、実際の値とも大きくかけ離れていない。

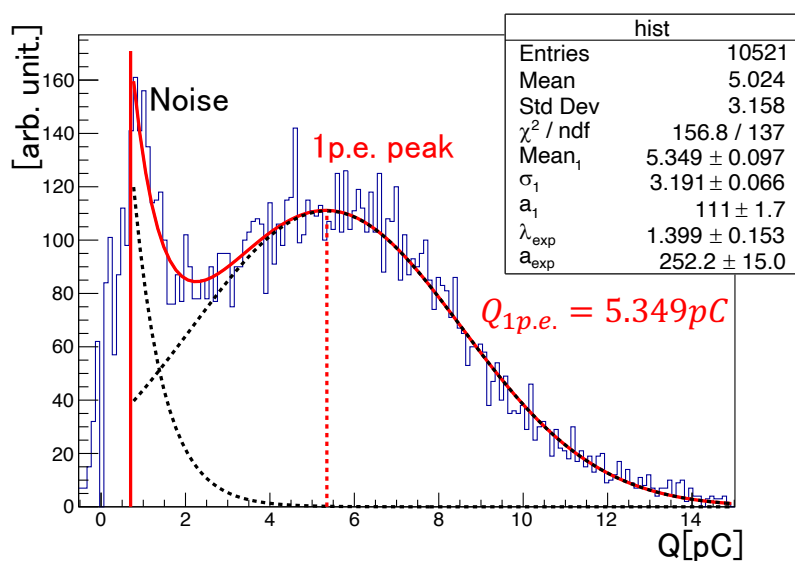


図 8.5 1p.e. ピークフィット

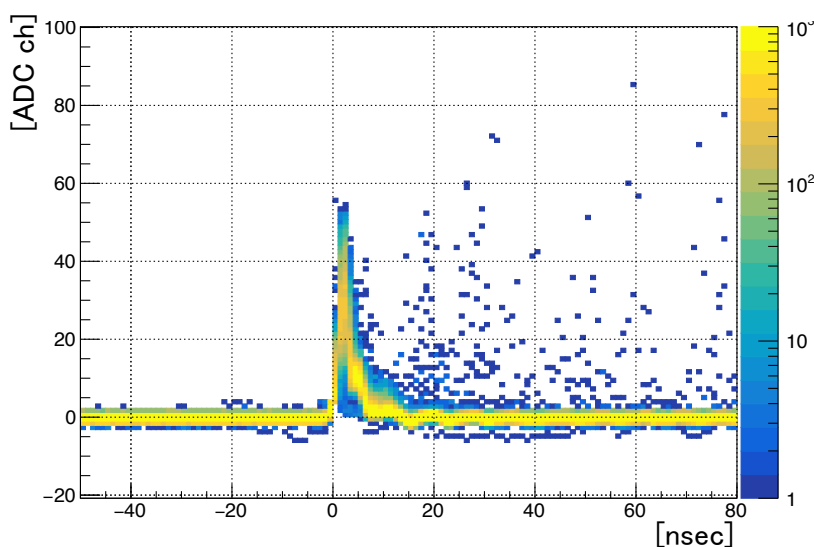


図 8.6 1 p.e. イベント付近の波形

実際に測定を行なった際の stop 側の PMT の信号についてもフィットを行なった。この場合ピークのカウン트가 10^3 程度になっておりポアソン分布から 2 p.e. ピークのカウンツ数は 10^1 で 3 p.e. ピーク以降は 0.1 程度となるため今回は 2 p.e. までのガウシアンと指数関数の和をフィットした 8.7。ここでは、先ほど求めた 1 p.e. のピーク 5.349 pC で割ることで x 軸の単位を $[Q_{1p.e.}]$ とした。

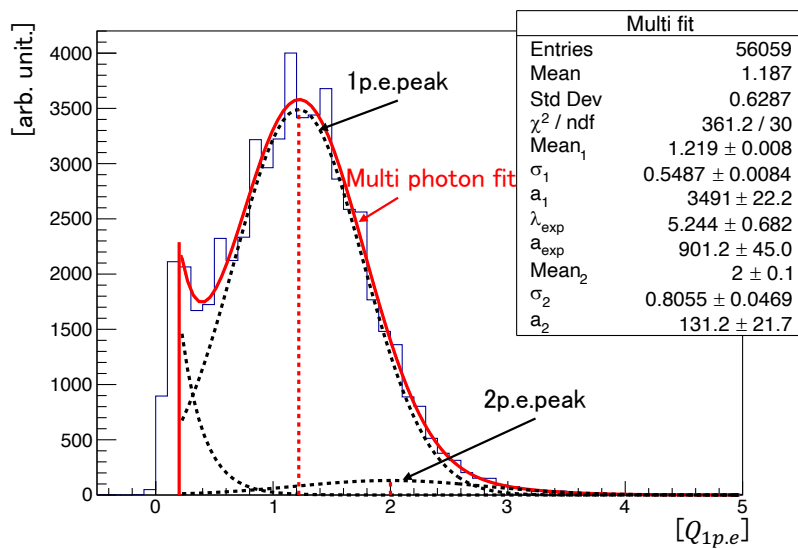


図 8.7 マルチフォトンピークフィット

付録 C

分光光度計による 9 cm 透過率測定

本研究では東京大学宇宙線研究所の UV-2600 を使用しているが、比較対象の先行研究では日立ハイテク社製ダブルビーム型分光光度計 U-3900 を使用している、この測定の装置・原理について説明する。

分光光度計は、主に液体、気体、または固体試料の吸光分析に用いられる装置である。可視領域はハロゲンランプ、紫外領域は重水素ランプを光源とし、回折格子を用いたモノクロメーターで単色光として取り出す。取り出された光は回転式の反射ミラーによって 2 つの光路に切り替わりながら分けられ、試料が入った長さそれぞれ 10 cm、1 cm の石英セルに入射する。試料中を透過した光は、最終的に同じ光電子増倍管に収集され、回転式反射ミラーによる光路切り替えのタイミングに対応して光強度が処理される (概念図 8.8)。

試料が液体の場合、長さの異なる石英セルを用い、それぞれの透過光強度を測定することで、境界面での反射等で光量が失われる影響を相殺することができる。10 cm、1 cm のセルの透過光強度をそれぞれ $T_{10\text{ cm}}$ 、 $T_{1\text{ cm}}$ とすると、ある試料について、 $10 - 1 = 9\text{ cm}$ の光路を透過する間に減衰した光量の相対的な値は、

$$T_{9\text{ cm, relative}} = \frac{I_{10\text{ cm}}}{I_{1\text{ cm}}} \quad (8.4)$$

と表すことができる。

ここで、短距離での光透過率がほぼ 100% であることが既知であり、試料と同条件で測定することができる物質を基準値 (ベースライン) として用いれば、試料の絶対的な光透過率が得られる。本研究では、屈折率 n が液体シンチレータ溶媒と比較的近い $n=1.42$ であるシクロヘキサン

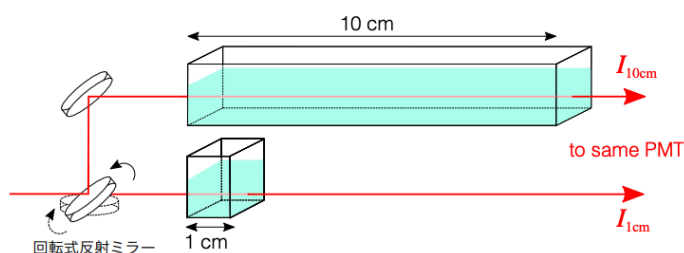


図 8.8 分光光度計による 9 cm 透過率測定の概略図

(cyclohexane) をベースラインとして用いた。

このときに 9 cm あたりの透過率は本文では 9 cm 透過率 $T_{9\text{ cm}}$ と記述し、

$$\begin{aligned} T_{9\text{ cm}}[\%] &= \frac{T_{9\text{ cm,relative}}(\text{sample})}{T_{9\text{ cm,relative}}(\text{cyclohexane})} \times 100 \\ &= \frac{I_{10\text{ cm}}(\text{sample})/I_{1\text{ cm}}(\text{sample})}{I_{10\text{ cm}}(\text{cyclohexane})/I_{1\text{ cm}}(\text{cyclohexane})} \end{aligned} \quad (8.5)$$

で与えられる。この測定において、先行研究 [56] より測定の誤差は 0.3% と求められている。

付録 D

KLG4 の応答確認

シミュレーションをするにあたって、初めに KLG4 の光学特性追加による変化を見た。

液体シンチレータの光学特性を全て変更する前、徐々にパラメータを変えていくことで検出光量の変化や各パラメータの影響を確認した。

条件

条件としては、検出器中心で 2.6MeV の γ 線を 10,000 個発生させその時の検出光量を比較した。

インナーバルーンへの Bis-MSB の追加

インナーバルーンに Bis-MSB を追加した際の光量評価をする前にパラメータを以下の順番で徐々に変更点を増やしていった。

1. 屈折率、蛍光波長、時定数
2. 減衰長
3. 吸収再発光確率

結果は図 8.9 に検出光量の相対値をまとめたものを表 8.1 にまとめた。表のパターンの番号とパラメータ変更順の番号が対応している。

表 8.1 LS に光学特性を追加していった時の変化

	LY _{relative}
KamLAND-Zen800	1.00
パターン 1	1.57
パターン 2	1.06
パターン 3	1.37

Based on Zen800 setup

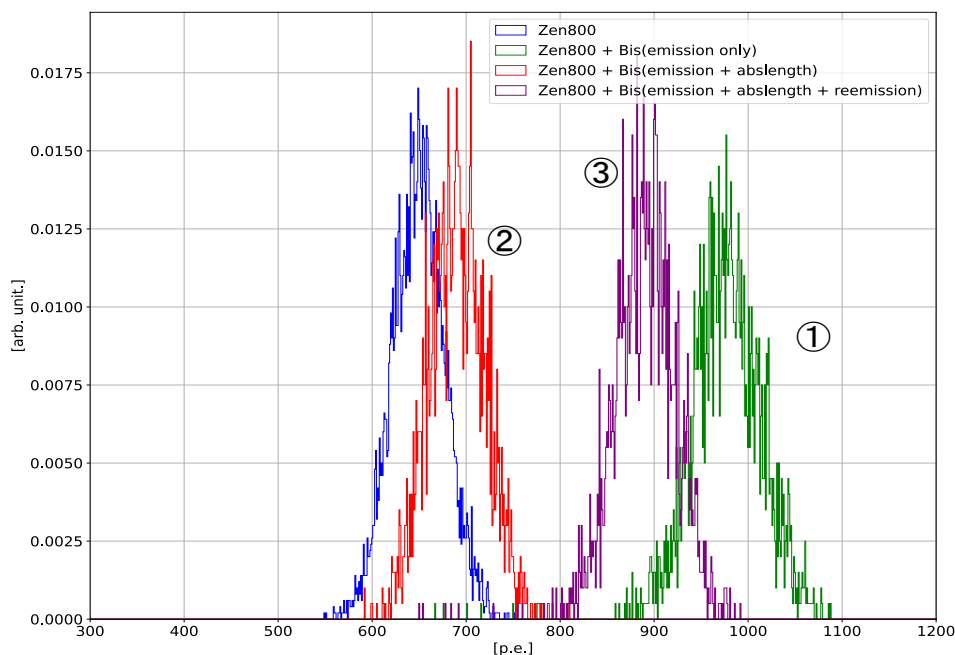


図 8.9 LS に光学特性を追加していった時の変化

結果を見てみるとパターン 1 からパターン 2 変化が一番大きく 48% となっている。これは単純に液体シンチレータの発光量が 48% 増加した場合と同じであり非常に大きな変化である。KamLAND 検出器のような大型の検出器では液体シンチレータの透過率が非常に影響することがわかる。

PEN フィルムの追加

PEN フィルムの光学特性を追加する場合にも、実際に特性を変更した際に検出光量が変わるかどうかが確認した。まず、検出機のジオメトリに PEN フィルムを追加した際に減衰長のみのデータを適用して実際に光量が減るか確認したのちに、吸収再発光による影響を見た (データ: 図 7.6)。今回は PEN フィルムの厚さは 25 μm としている。

結果は図 8.10 と表 8.10 に示す。

表 8.2 PEN フィルムを追加したときの検出光量変化

PEN	LY_{relative}
減衰長	0.77
減衰長 + 吸収再発光確率	0.99

Based on Zen800 setup

減衰長のみを適用すると実際に検出光量が下がることがわかる。実際、PEN フィルム 25 μm の透過率 (図 3.6 の黒線) をみると波長が 370 nm 付近で透過率が急激に下がっていることがわか

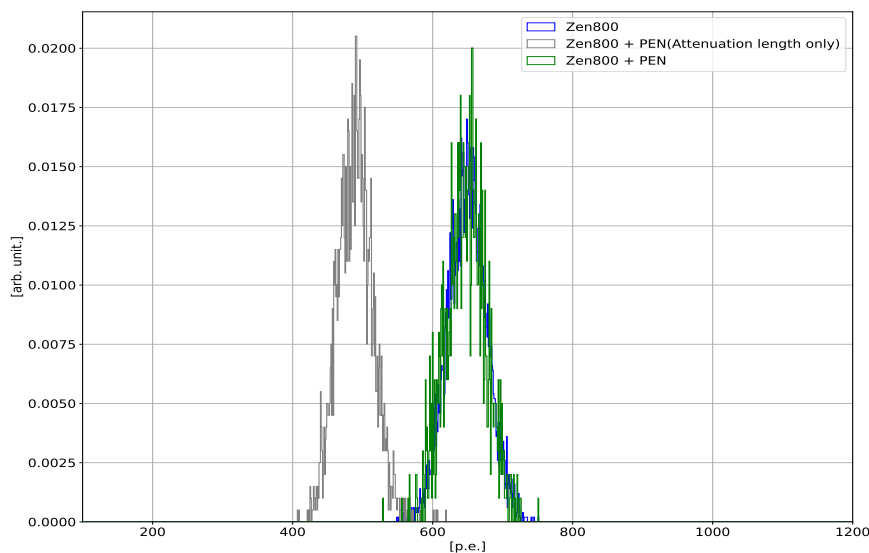


図 8.10 PEN フィルムを追加したときの検出光量変化

る。また、Bis-MSB を導入していない場合発光波長は図 3.6 の青線であり、かなり多くの領域が PEN フィルムを透過しない領域にあることがわかる。

PEN フィルムの吸収再発光確率の影響

PEN フィルムの吸収再発光の確率は [57] のデータ 57% であるが誤差が $\pm 7\%$ ある。実際この誤差がどれだけ影響するのか確認した。PEN フィルムの吸収再発光確率の最大値、50%、57%、64% で図 3.6 の黒線を規格化した時に中心地点で 2.6 MeV の γ 線を発生させたときの検出光量を比較した (図)。

表 8.3 PEN フィルムを追加したときの検出光量変化

Reemission probability(MAX)	LY
50%	621.6 ± 0.3
57%	642.5 ± 0.3
64%	648 ± 0.3

Based on Zen800 setup

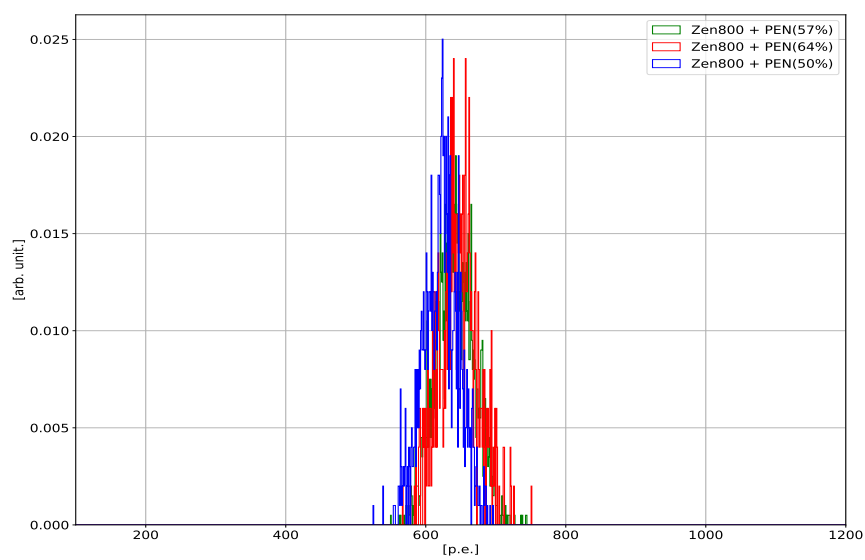


図 8.11 PEN フィルムの吸収再発光確率変化による検出光量の変化

謝辞

まず約2年半の研究活動の中でニュートリノセンターの多くの方々に大変お世話になりました。この場をお借りして深く感謝申し上げます。特に指導教員の岸本先生には、毎週のLSミーティングや打ち合わせなどで実験方法や知識だけでなく、研究への向き合い方、結果のまとめ方、発表での見せ方、話し方など多くのことを教えていただきました。お忙しい中でも、質問には親身に考え、答えていただき本当に感謝しています。研究を進める中で、自分の研究のまとめ方や進め方が徐々に成長していくことが実感できたのも岸本先生のおかげです。教えていただいた考え方や研究への向き合い方は、研究だけでなく別の分野で活躍する上でも非常に重要なことばかりだったと思います。

センター長の井上先生には、日々のミーティングや中間発表などで様々な観点からコメントしてくださいました。どんなことにも、様々な観点から助言をしていただき非常に感謝しているとともに、その経験値や知識量に圧倒されるばかりでした。この研究室を選択したことは私にとって非常に良い選択だったと思います。

清水先生にも、毎週のLSミーティングでご指導いただきました。解析方法などについて足りない部分や方向性について助言をいただきスムーズに解析や実験を進めることができました。また、疑問点を質問しに行った時も優しく指導していただき本当に助かりました。

尾崎先生にも、途中から毎週の打ち合わせにも参加していただき、様々な観点からアドバイスをいただきました。シミュレーションの部分は尾崎先生がいらっしゃるならより困難になっていたと思います。理解の浅い私にでもわかるよう、わかりやすく説明していただき本当に助かりました。

また技術職員の方々にも、部品の作成や日々の使用物の補充など様々な観点からサポートしていただきました。おかげでスムーズに実験を進めることができました。

加えて、東京大学宇宙線研究所の方々、特に安部先生にも大変お世話になりました。透過率測定器の使用方法や注意点、疑問点へのアドバイスなど多くの点でお世話になりました。直前に連絡した際にも快く使用を許可してくださいました。おかげでより高精度の測定をすることができました。

加えて、センターの先生、先輩、同期、後輩多くの方の助言やサポートがあってこの論文を作成することができました。皆さんとお話ししながら進める研究活動は本当に楽しかったです。ありがとうございました。

参考文献

- [1] “天文学辞典（日本天文学会）”,.
- [2] A. Serenelli, “Alive and well: A short review about standard solar models”, *The European Physical Journal A* **52**, 78 (2016) , DOI: [10.1140/epja/i2016-16078-1](https://doi.org/10.1140/epja/i2016-16078-1).
- [3] A. M. Serenelli, W. C. Haxton, and C. Peña-Garay, “SOLAR MODELS WITH ACCRETION. I. APPLICATION TO THE SOLAR ABUNDANCE PROBLEM”, *The Astrophysical Journal* **743**, 24 (2011) , DOI: [10.1088/0004-637X/743/1/24](https://doi.org/10.1088/0004-637X/743/1/24).
- [4] F. Villante, “ecCNO solar neutrinos: A challenge for gigantic ultra-pure liquid scintillator detectors”, *Physics Letters B* **742**, 279-284 (2015) , DOI: [10.1016/j.physletb.2015.01.043](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2015.01.043).
- [5] B. T. Cleveland, T. Daily, J. Raymond Davis, J. R. Distel, K. Lande, C. K. Lee, P. S. Wildenhain, and J. Ullman, “Measurement of the Solar Electron Neutrino Flux with the Homestake Chlorine Detector”, *The Astrophysical Journal* **496**, 505 (1998) , DOI: [10.1086/305343](https://doi.org/10.1086/305343).
- [6] M. Altmann, M. Balata, P. Belli et al., “Complete results for five years of GNO solar neutrino observations”, *Physics Letters B* **616**, 174–190 (2005) , DOI: [10.1016/j.physletb.2005.04.068](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2005.04.068).
- [7] J. N. Abdurashitov, V. N. Gavrin, V. V. Gorbachev et al., “Measurement of the solar neutrino capture rate with gallium metal. III. Results for the 2002–2007 data-taking period”, *Physical Review C* **80** (2009) , DOI: [10.1103/physrevc.80.015807](https://doi.org/10.1103/physrevc.80.015807).
- [8] Y. Fukuda, T. Hayakawa, K. Inoue et al., “Solar Neutrino Data Covering Solar Cycle 22”, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1683–1686 (1996) , DOI: [10.1103/PhysRevLett.77.1683](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.1683).
- [9] K. Abe, Y. Haga, Y. Hayato et al., “Solar neutrino measurements in Super-Kamiokande-IV”, *Physical Review D* **94** (2016) , DOI: [10.1103/physrevd.94.052010](https://doi.org/10.1103/physrevd.94.052010).
- [10] Y. Fukuda, T. Hayakawa, E. Ichihara et al., “Evidence for Oscillation of Atmospheric Neutrinos”, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1562–1567 (1998) , DOI: [10.1103/PhysRevLett.81.1562](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.1562).
- [11] Workman, R. L. and Burkert, V. D. and Crede, V. et al.(Particle Data Group), “Review of Particle Physics”, *PTEP* **2022**, 083C01 (2022) , DOI: [10.1093/ptep/ptac097](https://doi.org/10.1093/ptep/ptac097).
- [12] Z. Maki, M. Nakagawa, and S. Sakata, “Remarks on the Unified Model of Elementary Particles”, *Progress of Theoretical Physics* **28**, 870-880 (1962) , DOI: [10.1143/PTP.28.870](https://doi.org/10.1143/PTP.28.870).

- [13] L. Wolfenstein, “Neutrino oscillations in matter”, *Phys. Rev. D* **17**, 2369–2374 (1978), DOI: [10.1103/PhysRevD.17.2369](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.17.2369).
- [14] S. P. Mikheev and A. Y. Smirnov, “Resonant amplification of neutrino oscillations in matter and solar neutrino spectroscopy”, *Nuovo Cim. C* **9**, 17–26 (1986), DOI: [10.1007/BF02508049](https://doi.org/10.1007/BF02508049).
- [15] B. Aharmim, S. N. Ahmed, A. E. Anthony et al., “Electron energy spectra, fluxes, and day-night asymmetries of ^8B solar neutrinos from measurements with NaCl dissolved in the heavy-water detector at the Sudbury Neutrino Observatory”, *Phys. Rev. C* **72**, 055502 (2005), DOI: [10.1103/PhysRevC.72.055502](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.72.055502).
- [16] B. Aharmim, S. N. Ahmed, A. E. Anthony et al., “Combined analysis of all three phases of solar neutrino data from the Sudbury Neutrino Observatory”, *Phys. Rev. C* **88**, 025501 (2013), DOI: [10.1103/PhysRevC.88.025501](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.88.025501).
- [17] J. N. Bahcall, A. M. Serenelli, and S. Basu, “New Solar Opacities, Abundances, Helioseismology, and Neutrino Fluxes”, *The Astrophysical Journal* **621**, L85–L88 (2005), DOI: [10.1086/428929](https://doi.org/10.1086/428929).
- [18] S. Fukuda, Y. Fukuda, M. Ishitsuka et al., “Determination of solar neutrino oscillation parameters using 1496 days of Super-Kamiokande-I data”, *Physics Letters B* **539**, 179–187 (2002), DOI: [10.1016/S0370-2693\(02\)02090-7](https://doi.org/10.1016/S0370-2693(02)02090-7).
- [19] K. Abe, J. Adam, H. Aihara et al., “Observation of Electron Neutrino Appearance in a Muon Neutrino Beam”, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 061802 (2014), DOI: [10.1103/PhysRevLett.112.061802](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.061802).
- [20] A. Gando, Y. Gando, H. Hanakago et al., “Reactor on-off antineutrino measurement with KamLAND”, *Phys. Rev. D* **88**, 033001 (2013), DOI: [10.1103/PhysRevD.88.033001](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.88.033001).
- [21] P. de Salas, D. Forero, C. Ternes, M. Tórtola, and J. Valle, “Status of neutrino oscillations 2018: 3σ hint for normal mass ordering and improved CP sensitivity”, *Physics Letters B* **782**, 633–640 (2018), DOI: [10.1016/j.physletb.2018.06.019](https://doi.org/10.1016/j.physletb.2018.06.019).
- [22] M. Aker, A. Beglarian, J. Behrens et al., “First direct neutrino-mass measurement with sub-eV sensitivity”, (2021).
- [23] M. M. Ivanov, M. Simonović, and M. Zaldarriaga, “Cosmological parameters and neutrino masses from the final *Planck* and full-shape BOSS data”, *Phys. Rev. D* **101**, 083504 (2020), DOI: [10.1103/PhysRevD.101.083504](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.101.083504).
- [24] T. Yanagida, “Horizontal Symmetry and Masses of Neutrinos”, *Progress of Theoretical Physics* **64**, 1103–1105 (1980), DOI: [10.1143/PTP.64.1103](https://doi.org/10.1143/PTP.64.1103).
- [25] F. T. Avignone, S. R. Elliott, and J. Engel, “Double beta decay, Majorana neutrinos, and neutrino mass”, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 481–516 (2008), DOI: [10.1103/RevModPhys.80.481](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.80.481).
- [26] S. Abe, S. Asami, M. Eizuka et al., “First Search for the Majorana Nature of Neutrinos in the Inverted Mass Ordering Region with KamLAND-Zen”, (2022), DOI: [10.48550/arXiv.2203.02139](https://doi.org/10.48550/arXiv.2203.02139).

- [27] A. Gando, Y. Gando, H. Hanakago et al., “Measurement of the double- β decay half-life of ^{136}Xe with the KamLAND-Zen experiment”, *Phys. Rev. C* **85**, 045504 (2012), DOI: [10.1103/PhysRevC.85.045504](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.85.045504).
- [28] A. Gando, Y. Gando, T. Hachiya et al., “Search for Majorana Neutrinos Near the Inverted Mass Hierarchy Region with KamLAND-Zen”, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 082503 (2016), DOI: [10.1103/PhysRevLett.117.082503](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.082503).
- [29] S. Abe, S. Asami, M. Eizuka et al., “Search for the Majorana Nature of Neutrinos in the Inverted Mass Ordering Region with KamLAND-Zen”, *Phys. Rev. Lett.* **130**, 051801 (2023), DOI: [10.1103/PhysRevLett.130.051801](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.130.051801).
- [30] Z. Collaboration, S. Abe, S. Asami et al., “Measurement of cosmic-ray muon spallation products in a xenon-loaded liquid scintillator with KamLAND”, (2023).
- [31] 尾崎秀吉, “[KamLAND-Zen](#) による逆階層構造領域での 0 崩壊探索の開始”, 『高エネルギーニュース **41-4**』 (2023).
- [32] 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).
- [33] H. Ozaki, “High Sensitivity Search for Neutrinoless Double-Beta Decay in KamLAND-Zen with Double Amount of ^{136}Xe ”, Ph.D. dissertation, Tohoku University (2020), URL: <https://cir.nii.ac.jp/crid/1110287442936923520>.
- [34] O. S, G. Y, and I. K, “Scintillation balloon for neutrinoless double-beta decay search with liquid scintillator detectors”, *Progress of Theoretical and Experimental Physics* **2019**, 073H01 (2019), DOI: [10.1093/ptep/ptz064](https://doi.org/10.1093/ptep/ptz064).
- [35] 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).
- [36] 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).
- [37] 三本杉洗斗, “[KamLAND2-Zen](#) 実験のための集光ミラーの形状最適化”, 修士論文, 東北大学 (2021).
- [38] 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).
- [39] “Jan W. Gooch, editor. Cauchy’s dispersion formula, pp.167–167. Springer New York, New York, NY, 2007.”.
- [40] 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).
- [41] 大和田憲太郎, “水を主成分とする液体シンチレータの開発”, 修士論文, 東北大学 (2004).
- [42] 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).
- [43] 吉田学立, “Limit on Majorana Neutrino Mass with Neutrinoless Double Beta Decay from [KamLAND-Zen](#)”, 博士論文, 東北大学 (2014).

- [44] 寛昭石河, “液体シンチレーションにおけるエネルギー移行機構とクエンチング”, 『RA-DIOISOTOPES』, 第 25 巻, 355-363 頁 (1976), DOI: [10.3769/radioisotopes.25.6_355](https://doi.org/10.3769/radioisotopes.25.6_355).
- [45] “[ELJEN TECHNOLOGY, SILICONE GREASE EJ-550](#)”.
- [46] 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”, 修士論文, 東北大学 (2011).
- [47] ・ Glenn F. Knoll 神野郁夫木村逸郎阪井英次, “放射線計測ハンドブック”, オーム社, 第 4 版版 (2013), URL : <https://ci.nii.ac.jp/ncid/BB13533298>.
- [48] “UV-2600 の取扱説明書 206-97439B・島津製作所”,.
- [49] “MPC-2600A の取扱説明書 207-90246・島津製作所”,.
- [50] 陳育勤, “XENONnT の中性子 veto カウンターの性能評価手法の研究”, 修士論文, 東京大学 (2020).
- [51] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako et al., “Geant4—a simulation toolkit”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **506**, 250-303 (2003), DOI: [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(03\)01368-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8).
- [52] G. R. Araujo, L. Baudis, N. McFadden, P. Krause, S. Schönert, and V. H. S. Wu, “R & D of wavelength-shifting reflectors and characterization of the quantum efficiency of tetraphenyl butadiene and polyethylene naphthalate in liquid argon”, *The European Physical Journal C* **82** (2022a), DOI: [10.1140/epjc/s10052-022-10383-0](https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-022-10383-0).
- [53] 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).
- [54] 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).
- [55] “[HAMAMATSU. PHOTOMULTIPLIER TUBE R329-02](#)”.
- [56] 大浦智也, “[KamLAND2-Zen 実験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).
- [57] G. R. Araujo, L. Baudis, N. McFadden, P. Krause, S. Schönert, and V. H. S. Wu, “R & D of wavelength-shifting reflectors and characterization of the quantum efficiency of tetraphenyl butadiene and polyethylene naphthalate in liquid argon”, (2022b), DOI: <https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-022-10383-0>.