

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25287055

研究課題名(和文)液体キセノンシンチレータの赤外発光の研究

研究課題名(英文)A study on infrared emission of liquid xenon scintillator

研究代表者

中村 正吾 (NAKAMURA, Shogo)

横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：50212098

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,200,000円

研究成果の概要(和文)：液体キセノンシンチレータについて、真空紫外領域に加え波長が1,700 nm以下の近赤外領域でも発光スペクトルを測定した。液体キセノンは放射線源からのガンマ線で励起し、真空紫外領域の発光と同期する近赤外領域の光子を光電子増倍管と分光器を用いて測定した。結果として、波長が1,300 nm付近で従来に報告されていた発光は認められなかったが、700-1,100 nmの波長領域で未報告の有意な発光を新たに確認した。その近赤外領域の総光子数は真空紫外領域の光子数の $17 \pm 5$  %だった。この近赤外発光は、キセノン原子の励起準位間の遷移によるものと考えて辻褃が合う。

研究成果の概要(英文)：Emission spectrum of liquid xenon scintillator was measured in the near-infrared region below 1,700 nm in addition to the vacuum-ultraviolet region. The liquid xenon was excited by gamma-rays from a radioactive source, and the near-infrared scintillation photons coincident with those in the vacuum-ultraviolet region were measured using a photomultiplier and a monochromator. As a result, the emission reported around 1,300 nm was not observed, but instead significant amount of emission was newly recognized in a wavelength region between 700 and 1,100 nm. The integrated number of photons emitted in the region was about  $17 \pm 5$  % relative to that in the vacuum-ultraviolet region. The near-infrared emission is consistent to be due to some transitions between excited states of atomic xenon.

研究分野：宇宙素粒子実験，放射線計測

キーワード：液体キセノン シンチレータ 赤外発光

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 宇宙物理学の最重要課題の1つである宇宙暗黒物質の解明のため、液体キセノンをシンチレータとしてトン規模に用いた暗黒物質探索が世界各地の地下実験場で進められている。また、標準理論を超える素粒子の統一理論を検証する $\mu$ 粒子希崩壊探索実験や、ニュートリノのマヨラナ質量を測るための $0\nu 2$ 重 $\beta$ 崩壊探索でも、液体キセノンを大規模に用いる実験がそれぞれ進行しつつある。

(2) 液体キセノンは、波長が175 nm前後という真空紫外領域の短波長の紫外光(VUV光)を発するシンチレータとして1960年代から知られており(文献①)、その光の検出にはVUV光に感度のある光センサが現在まで用いられてきた。しかしながら、国外において2000年から2003年にかけて、キセノンが近赤外(NIR)領域でもVUV光の40%前後のシンチレーション光を発することがあるとの測定の報告が少数ながら出された(文献②)。これらによると、

- ・気体キセノンは、0.7-1.6  $\mu\text{m}$ のNIR波長領域で、約21,000光子/MeVもの発光があり、1.3  $\mu\text{m}$ でピークが見られる
- ・液体キセノンは気体キセノンよりNIR領域の発光量が少ない

とのことで、液体キセノンについてはデータが不足しており、気体キセノンについても測定精度は高いとは言えず、発光機構に至っては殆ど分かっていないようであった。

(3) 国外の上記の研究動向を受け、国内では、研究代表者等が2010年末に、気体と液体のキセノンについて、 $\alpha$ 線による励起でVUV発光と相関をもったNIR発光が生じていることを確認し、2011年秋の日本物理学会で報告した(文献③)。しかし、この測定実験は、既存の装置に最小限の改造を施して実施したに留まって感度が低かったため、やはり十分な精度で結果を出すことは出来なかった。その最大の原因は、用いた光センサの有効面積が小さくNIR光の検出効率が小さかったため、NIR発光の事実を確認した程度にとどまった。

(4) 研究代表者等は2002年頃から現在まで、液体キセノンを大規模に用いる本邦の暗黒物質探索実験XMASSのために、液体キセノンの基礎的な特性について研究を進めてきた。そして、以前から用いられてきた特性値の中に精度が不十分な量があることに着目し、液体キセノンについて様々な技術を習得しながら、その特性の測定を自ら行なってきた。具体的には、最初に液体キセノンのVUV領域から可視域にわたる屈折率を決定(文献④)し、次にVUV発光の波長スペクトルの決定(文献⑤)を行ない、そして、VUV発光の減衰時間特性の測定などをこれまで手掛けて経験を積み重ねた結果、今後に取り

組むべき液体キセノンの基礎研究の重要なテーマの一つとして、本研究課題であるNIR発光の研究を進めるべきであると考えてに至った。

(5) 以上の経緯において特に、VUV発光の波長スペクトルの決定実験の経験からは本研究のNIR発光の研究に応用出来るノウハウが多く得られ、既存の装置の多くがそのまま再利用が可能で、本研究で初めて導入すべき機器は、主に、NIR領域に対応する分光器と、NIR光のセンサであると考えられた。その他のキセノンガス系、冷却系、真空系の多くは、従来の系をベースに最低限の整備を行なうだけで使用出来る状況であった。

### <引用文献>

- ① J. Jortner et al., J. Chem. Phys. 42 (1965) 4250-4253.
- ② S. Belogurov et al., NIM A 452 (2000) 167-169; J.A. Wilkerson et al., NIM A 500 (2003) 345-350; G. Bressi et al., NIM A 461 (2001) 378-380.
- ③ 中村正吾他, 日本物理学会 2011年秋季大会 (2011) 16pSH-12.
- ④ 例えば, S. Nakamura et al., Proceedings of Workshop on Ionization and Scintillation Counters and Their Uses (2007) 27-34 など.
- ⑤ 例えば, K. Fujii et al., Proceedings of the 25th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses (2011) 84-89 など.

### 2. 研究の目的

(1) 最初に、本研究を通じて必須となる微弱なNIR光の波長スペクトルを精度良く測定する測光技術を、NIR光用の分光器と光電子増倍管を用いて確立する。そのために、高いSN比を目指し種々の基準光源を用いた波長校正と時間校正を行なう。波長の決定精度は、誤差5 nmを目指す。

(2) 気体キセノンと液体キセノンについて、VUV領域の発光と同期するNIR領域のシンチレーション光を測定し、取得したデータを解析してNIR領域での発光スペクトルを求める。さらに、NIR光の発光機構を推定すると共に、将来の実験への応用を検討する。

### 3. 研究の方法

(1) 実験装置は、以前に液体キセノンのVUV領域の発光スペクトルの測定で成功を収めた装置に改造を施し、NIR領域の測定も可能とするべくNIR領域対応の新たな分光器(Princeton Instruments, SP-2358)と光子計数用の光電子増倍管(HAMAMATSU, R2658PおよびH10330B-75)を導入した。図1に、光学系の主要部である分光器と光電子増倍管の追加を示した平面図を示す。

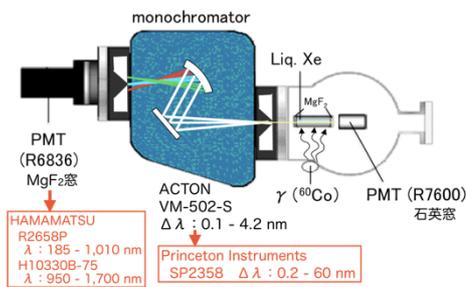


図1 光学系の分光器と光電子増倍管の追加

(2) 液体キセノンを貯める光学セルには、従来の系を引き続き使用し、逆T字型の形状をした横長のステンレス製の円柱型セルを用いた。光学セルの両端には、ICF34規格のフッ化マグネシウム窓のビューポートを取付け、シンチレーションの真空紫外光を高い効率で取り出せるようになっている。この光学セルは、真空槽内に上部の蓋から吊り下がる形で取り付けられ、蓋を貫くようにしてキセノンガス系と接続された。なお、光学セルは真空槽の側面に直結された分光器の入射スリットに十分に近付けて、光学セルの内表面からの不要な反射光が分光器に入ることを極力抑えた。

光学セルからのシンチレーション光は2つの窓から出るが、分光器側の窓から出た光は分光器により分光され、分光器の出射スリット側に取り付けたNIR領域用の光電子増倍管で光子計数を行なった。また、もう一方の窓から出た光は、窓の近くに置かれた真空槽内の光電子増倍管 (HAMAMATSU, R7600) でVUV光を測光し、シンチレーションの発生時刻の信号を取得した。

各光電子増倍管からの信号はそれぞれ最初に2つに分岐し、光量の情報を持つアナログ信号と時間情報を持つNIM信号とを生成した。そして、2つの光電子増倍管のNIM信号が同時に発生した時のみ、アナログ信号をADC回路で処理しCAMACシステムを通じてPCに取り込むデータ取得を行なった。この手法により、光電子増倍管自身が発する熱ノイズの影響を常温でも十分に抑制した光子計数が可能になり、微弱な光の波長スペクトルも高いSN比で取得することが可能になった。

(3) 液体キセノンは、真空槽の外側の近傍に固定した<sup>137</sup>Cs線源 (2 MBq) と<sup>57</sup>Co線源 (2 MBq) を両方同時に使い、<sup>137</sup>Csの662 keVのγ線と<sup>57</sup>Coの122 keVのγ線で励起した。

液体キセノンの原料には、市販の高純度キセノンガス (Japan Air Gases Co., 純度 >99.999%) を使い、実験の開始時に純化装置 (SAES, St707Pi11/4-2/50 を用いて構築) を通してさらに純化したのち、パルス管冷凍機 (IWATANI, PDC08Y) を用いて約-110°Cに冷却し液化して光学セル内に貯めて用いた。キセノンの圧力と温度は、それぞれ、ガス系に接続した精密圧力計 (YOKOGAWA, MT110)

とセル内に取り付けた白金抵抗温度センサ (LakeShore, Pt-111) を用いて測定した。

(4) 本測定に先立って、2つの光電子増倍管からのNIM信号のタイミングを合わせ、同時計測の時間幅、分光器のスリット幅とスリット高、測定時間のそれぞれについて、適切な測定条件を探索した。その目的で、VUV領域からNIR領域まで幅広い波長範囲でパルス発光するキセノンフラッシュランプモジュールを新たに開発して導入し、使用した複数の光電子増倍管の応答時間特性の違いと、測光感度の波長依存性を補正するためのデータを取得した。

(5) データ取得時の分光器の設定は、VUV領域では波長幅と測定波長間隔を共に約4 nmに設定し、NIR領域では当初の計画よりも検出感度を高めるためスリットを広く開けて波長幅と測定波長間隔を共に約60 nmに設定した。そして、測定は140-1,600 nmの範囲で波長スキャンし、VUV領域では波長毎に500秒、NIR領域では1,000秒の光子計数を行なった。取得した計数値は、バックグラウンド測定による計数値を差引いた後、光学系の各部材の透過率や光電子増倍管の感度特性を考慮して補正し、さらに分光器の有限のスリット幅の影響は逆たみ込みで補正して、最終的な発光スペクトルを求めた。

#### 4. 研究成果

(1) 気液平衡状態の約1気圧 (10<sup>5</sup>Pa) の液体キセノンについて、γ線励起した時のシンチレーションの発光スペクトルをVUV領域からNIR領域まで切れ目なく測定し、NIR領域では従来よりも精度良く測定することに成功した。結果を、図2に示す。

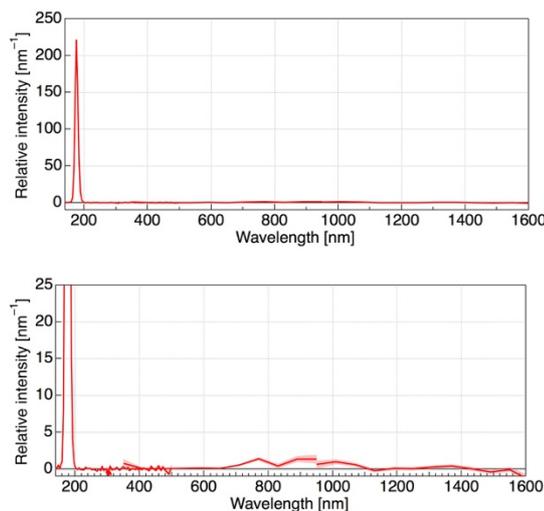


図2 液体キセノンの発光スペクトル  
下図は上図の縦軸を10倍に拡大  
帯の幅は統計誤差を表す

結果として、先行研究の報告により当初に予想されていた波長である1.3 μm前後に信

号を見出すことは出来ず、その代わりに、700-1,100 nm に有意な発光を見出した。その総光子数は VUV 領域の光子数の  $17 \pm 5\%$  だった。この波長帯で、液体キセノンの発光スペクトルの構造まで詳細に報告したのは本研究が初めてと思われる。

(2) 新たに見出した 700-1,100 nm の発光の起源を調査した。その結果、液体キセノンが NIR 領域において高い透過率を示すことと、気体キセノンについて知られている発光スペクトルとの比較から、キセノン原子の励起状態間の遷移に伴う発光が主な起源であることが推測される。そこで、校正のために導入したキセノンフラッシュランプの発光スペクトルも取得して NIST のデータベースと照合しながら発光過程の研究を現在まで進めているが、まだ十分な説明が出来ていない状況にあるため起源を断定するのは時期尚早でさらなる研究が必要である。

なお、もし NIR 領域の発光が実際にキセノン原子の励起状態間の遷移に因るものであれば、放射線で励起されるキセノン原子の励起状態の分布が放射線の種類によって異なる可能性があり、その結果として VUV 領域と NIR 領域の発光の強度比に違いが生じることが期待出来る。このことは入射放射線の粒子弁別の新たな手法の発展の可能性を開くことから興味深く、今後のさらなる研究が望まれる。

(3) 本研究の副次的な成果として、本研究では測光系の光の検出効率の波長依存性を VUV 領域から NIR 領域まで幅広く切れ目なく決定する校正を行なったことに伴い、液体キセノンの近紫外 (NUV) 領域での発光スペクトルも取得出来た。この結果から、液体キセノン中のシンチレーション光の散乱長について、近年の理論値と実験値の大きな食い違いの原因に関する議論に有益な情報を新たに提供することが出来たため、その重要性と今後の研究の方向性についても学会等で報告した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 2 件)

- ① Keiko Fuji, Yuya Endo, Yui Torigoe, Shogo Nakamura, Tomiyoshi Haruyama, Katsuyu Kasami, Satoshi Mihara, Kiwamu Saito, Shinichi Sasaki, Hiroko Tawara, High-accuracy measurement of emission spectrum of liquid xenon in vacuum ultraviolet region, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 査読有, Vol. 795, 2015, pp. 293-297, <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2015.05.065>
- ② Ikuko Murayama, Shogo Nakamura, Time profile of the scintillation from

liquid and gaseous xenon, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 査読有, Vol. 763, 2014, pp. 533-537, <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2014.07.003>

〔学会発表〕 (計 13 件)

- ① 中村正吾, 液体キセノン中の散乱長の測定-2, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 20 日, 大阪大学 豊中キャンパス (大阪府・豊中市)
- ② 狩野芳樹, 液体キセノンの散乱長と赤外発光の測定, 研究会「放射線検出器とその応用」(第 31 回), 2017 年 1 月 24 日, 高エネルギー加速器研究機構 つくばキャンパス (茨城県・つくば市)
- ③ 中村正吾, 液体キセノンシンチレータの近紫外発光の研究, 東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表研究会, 2016 年 12 月 10 日, 東京大学宇宙線研究所 柏キャンパス (千葉県・柏市)
- ④ 中村正吾, 液体キセノンの赤外発光の測定-4, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 24 日, 宮崎大学 木花キャンパス (宮城県・宮崎市)
- ⑤ 武田紘樹, 液体キセノン中の散乱長の測定-1, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 24 日, 宮崎大学 木花キャンパス (宮城県・宮崎市)
- ⑥ 中村正吾, 液体キセノンの発光波長変換の可能性, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 21 日, 東北学院大学 泉キャンパス (宮城県・仙台市)
- ⑦ 小野隼人, 液体キセノンの赤外発光の測定-3, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 21 日, 東北学院大学 泉キャンパス (宮城県・仙台市)
- ⑧ 中村正吾, 液体キセノンシンチレータの近紫外発光の研究, 東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表研究会, 2015 年 12 月 18 日, 東京大学宇宙線研究所 柏キャンパス (千葉県・柏市)
- ⑨ 中村正吾, 液体キセノンの赤外発光の測定-2, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 24 日, 早稲田大学 早稲田キャンパス (東京都・新宿区)
- ⑩ 中村正吾, 液体キセノンシンチレータの近紫外発光の研究, 東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表研究会, 2014 年 12 月 13 日, 東京大学宇宙線研究所 柏キャンパス (千葉県・柏市)
- ⑪ 中村正吾, 液体キセノンの赤外発光の測定, 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 30 日, 東海大学 湘南キャンパス (東京都・新宿区)
- ⑫ 中村正吾, 液体キセノンの赤外発光の測定, 研究会「放射線検出器とその応用」(第 28 回), 2014 年 1 月 29 日, 高エネ

ルギー加速器研究機構 つくばキャンパス  
(茨城県・つくば市)

- ⑬ 中村正吾, 液体キセノンシンチレータの赤外発光の研究, 東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表研究会, 2013年12月20日, 東京大学宇宙線研究所 柏キャンパス (千葉県・柏市)

[その他]

ホームページ

[http://afs1.phys.ynu.ac.jp/theme/theme\\_1xeir.html](http://afs1.phys.ynu.ac.jp/theme/theme_1xeir.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

中村 正吾 (NAKAMURA Shogo)  
横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 50212078

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

俵 裕子 (TAWARA Hiroko)  
高エネルギー加速器研究機構・放射線科学センター・准教授  
研究者番号: 30188453

春山 富義 (HARUYAMA Tomiyoshi)  
高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・教授  
研究者番号: 90181031

### (4) 研究協力者

大山 修平 (OHYAMA Shuhei)  
吉田 真央 (YOSHIDA Mao)  
濱西 亮 (HAMANISHI Ryo)  
長井 真也 (NAGAI Masaya)  
御供田 崇 (GOKUDEN Takashi)  
小野 隼人 (ONO Hayato)  
日野 陽太 (HINO Yota)  
武田 紘樹 (TAKEDA Hiroki)  
八木 大介 (YAGI Daisuke)  
中村 進 (NAKAMURA Susumu)  
狩野 芳樹 (KANOU Yoshiki)  
安達 佑哉 (ADACHI Yuya)  
三原 智 (MIHARA Satoshi)  
笠見 勝祐 (KASAMI Katsuyu)  
佐々木 慎一 (SASAKI Shinichi)  
藤井 景子 (FUJII Keiko)  
村山 育子 (MURAYAMA Ikuko)