

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26800116

研究課題名(和文)ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊探索高感度化に向けた開発研究

研究課題名(英文)Development of new liquid scintillator for neutrinoless double beta decay

研究代表者

丸藤 亜寿紗 (Gando, Azusa)

東北大学・ニュートリノ科学研究センター・教育研究支援者

研究者番号：20704399

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の探索はニュートリノのマヨラナ性を現実的に調べられる唯一の方法であり、世界中で様々な実験が行われている。実験の次なるターゲット、逆階層構造の探索(半減期で10の26-27乗年)に到達するには実験の更なる高感度化が求められており、液体シンチレータを用いた大型実験の場合、エネルギー分解能の改善が大きなポイントとなる。本研究では発光量の高い液体シンチレータの開発に主眼を置いた。有力な溶媒候補であるリニアアルキルベンゼンを用いて、純化の方法を確立し、これによって現行の液体シンチレータの1.52倍の発光量を得られた。

研究成果の概要(英文)：Neutrinoless double beta decay requires Majorana nature of neutrino and various experiments search for this decay. Next target of experiments is to search for inverted hierarchy; its target half life reaches to 10 to the power 26-27 year. For a large liquid scintillator experiment, improvement of energy resolution is quite important. We developed linear alkyl benzene based liquid scintillator with high light yield. Purification method is evaluated and its light yield is 1.52 times higher than current liquid scintillator.

研究分野：素粒子実験

キーワード：ニュートリノ 二重ベータ崩壊 液体シンチレータ カムランド

1. 研究開始当初の背景

近年のニュートリノ振動実験の進展から、ニュートリノには小さくも有限な質量があることが明らかになり、それぞれの世代間の質量の二乗の差(の絶対値)が精密に測定されるようになってきている。この有限な質量がニュートリノに関する二つの新たな疑問を呈する。一つが、ニュートリノの絶対質量と質量の順序(階層構造)、そしてもう一つが、ニュートリノのマヨラナ性である。ニュートリノのマヨラナ性を調べる現実的な方法として、ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の探索がある。この崩壊が観測されれば、ニュートリノがマヨラナ粒子であることが明らかになり、また、半減期からニュートリノの有効質量が得られ、ここから質量へのアプローチが出来る。

実験の重要性から、世界中で長年に渡って様々な崩壊核、測定技術を組み合わせた実験が行われてきた。しかし、この崩壊は未だ観測されておらず、半減期で 10^{24-25} 年の下限値が与えられているのみである。実験の次なるターゲット、逆階層構造の探索(半減期で 10^{26-27} 年)に到達するには実験の更なる高感度化が求められている。

2. 研究の目的

逆階層構造の探索を現実的な観測時間(~数年)で行うには、(1)極低バックグラウンド、(2)トンスケールの崩壊核を納められる大きさ、(3)高エネルギー分解能の3点を同時に満たす検出器が必要となる。申請者の所属するカムランド禅実験は、1,000 トンの液体シンチレータを使用した大型ニュートリノ検出器カムランドを母体とし、すでに(1)、(2)を達成できる環境を有している。一方、液体シンチレータを使用する場合にネックになるのがエネルギー分解能である。エネルギー分解能は、低ければ低いほどニュートリノを伴わない崩壊と通常の崩壊との分離が難しく、検出感度が向上しなくなってしまう。エネルギー分解能を向上させるには、集光率、発光量を増加させればよい。集光率を増やすには、光電子増倍管へのウィンストンコーンの取付けが考えられる。一方、発光量を増やすには既存の液体シンチレータを新しいものにかえなければならない。本研究では発光量に焦点をあて、既存の液体シンチレータの1.5 倍の発光量を有し、かつ、低バックグラウンドの液体シンチレータの完成を目指した。

3. 研究の方法

本研究では、新しい液体シンチレータの最有力候補であるリニアアルキルベンゼンを用いる。発光量、透過率といった液体シンチレータの基本的性質をまず求め、製造メカによる差や、ロット差があるかも確認する。性能のよさと手に入れやすさを考慮し、特定のリニアアルキルベンゼンを用いて、様々な純

化方法を試していく。純化を施した液体シンチレータの発光量等を測定し、よりよい純化方法(純水を用いた液々抽出、蒸留、吸着、フィルトレーション、窒素置換)を見定め、目標の発光量をもった液体シンチレータを探していく。

4. 研究成果

(1) リニアアルキルベンゼンの基本的な性質の確認

まず、リニアアルキルベンゼンの発光量、および透過率を測定し、製造メカによる差異を確認した。透過率測定では、分光光度計を使用し、9 cm の透過率を見積もる。全てのサンプルで吸収が見られ、特に波長 400 nm 以下での透過率の低下は、現行の液体シンチレータ(プソイドクメンとドデカンの混合、発光剤として PPO を使用)と比較して顕著であった(図 1)。吸収は液体シンチレータの発光

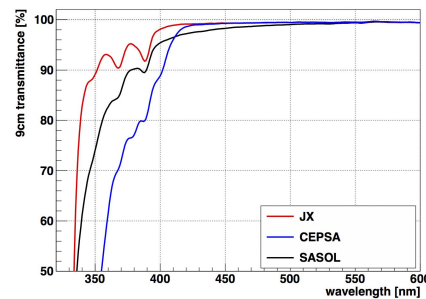


図1 リニアアルキルベンゼンの9cm透過率

JX(赤)が日本製、CEPSA(青)がカナダ製、SASOL(黒)がイタリア製(引用文献①)。

と光伝搬を妨げる原因となるため、純化方法を検討する必要がある。一方、発光量の測定では、 ^{137}Cs の放出する 662 keV のガンマ線を用い、液体シンチレータの電子反跳と後方散乱を利用して同時計測を行う。全てのサンプルで現行の液体シンチレータよりも約 5%よい数字が得られた。純化方法の検討に使用するサンプルは、これらの測定の結果と、入手しやすさを考慮し、日本製のリニアアルキルベンゼンを使用することとした。ロットによる差があるかどうかは発光量、透過率測定、およびガスクロマトグラフィによる不純物の時間分布を見ることで確認し、発光量、透過率のばらつきはあるものの、不純物の主成分に大きな差がないことが明らかとなった。

(2) 純化方法の検討

ここからは液体シンチレータの不純物を除去する方法とその結果を述べていく。最初に行ったのは、液体シンチレータを用いる際によく行なわれている窒素置換である。液体シンチレータを大気開放すると、空気中の酸素によって発光量が低下することが知られている。そのため、液体シンチレータに十分な量の窒素をバブリングして溶存酸素を追い出し、発光量を測定した。これによって発光量は 25%増加することが明らかになった。

次からは有機不純物を減らす方法を検討する。まず、フィルターを用いてリニアアルキルベンゼンのろ過を行った。フィルターの大きさは 50 nm としたが、これによる透過率の改善はなされなかった。

次に行ったのは液液抽出である。液体シンチレータは無極性の有機溶剤であるので、水と混ぜ合わせても混ざらない。一方、液体シンチレータ中に溶けている親水性を持つ不純物は水に溶けるため、最後に水と有機溶剤を分離することで、液中に溶けていた親水性の不純物を除去できる。安全かつ大量に液体シンチレータを純化できる方法で、現行の液体シンチレータの純化にも用いられている。今回、リニアアルキルベンゼンにもこの方法を試し、透過率を比較したが、有為な変化は見られなかった。これら二つの純化から吸光の原因となる物質は揮発で、親水性のない物質であることが明らかになった。

次に行ったのは蒸留法である。蒸留は沸点の違いを利用して物質を分別する方法である。現行の液体シンチレータでは、大型蒸留装置を用いて減圧蒸留を行い、バックグラウンドとなる放射性金属不純物の低減に成功している。減圧蒸留は真空で行うため、溶存酸素が高い状態での蒸留を避けられ、蒸留中に酸素と結合した不純物が生じにくい。また、数百度という高温は液体シンチレータの変質を招く可能性が高く、減圧下、沸点を下げて蒸留できるというメリットを持っている。今回は実験室でできる様、500 ml 程度の液体シンチレータが蒸留できる系を組み、実験を行った。リニアアルキルベンゼンは現行の液体シンチレータより沸点が高いので、より高温での蒸留が必要であり、長時間の蒸留が必要となった。蒸留を行ったサンプルの透過率を測定したところ、窒素置換や、フィルトレーションより透過率は改善した。また、発光量も蒸留前と比較して 5.7% 増加している。ただし、収率は 20% 程度と低く、大量の液体シンチレータの純化には不向きであることが明らかになった。また、沸点が高いため、現行の大型装置を使うには大掛かりな改修が必要となることがネックとなる。

最後に吸着剤を用いた純化を試した。一般には活性炭やシリカゲルが知られているが、本研究では活性アルミナ(住友化学、球状、直径 2-4mm)とモレキュラーシープ 13X 1/8(ユニオン昭和、ペレット、直径 3.2mm)、モレキュラーシープ 13X 1/16(関東化学、ペレット、直径 1.6mm) を使用した(図 2)。粉状の吸着剤を用いなかったのは、将来的に大量の液体



図2 使用した吸着剤の外観

左から、活性アルミナ、モレキュラーシープ13X 1/16、モレキュラーシープ13X 1/8。

シンチレータを純化することを想定しているためである。純化の手順としては、ガラス容器に一定量のリニアアルキルベンゼンと吸着剤を入れ、蓋で栓をしてから軽く攪拌し、室温環境下で1日以上静置した。その後、液と吸着剤を分け、濾紙または 50 nm の PTFE 製フィルターでろ過することで液中に残存した粉塵状の吸着剤を除去した。それぞれのろ過後の透過率を測定したところ、モレキュラーシープ 13X 1/8 が最も純化効率が高く、2 回繰り返し用いることで、ほぼ全ての吸光の原因となる物質を 1/100 程度まで落とすことができた。一般に、吸着剤は繰り返し用いると吸着能力が低下するが、吸着した物質を脱着させることで能力を回復させられる(活性化)。活性化した吸着剤を用いて、吸着能力が変化するかも確認したが、モレキュラーシープ 13X 1/8 では活性化前後で有意な差は生じなかった。液量に対してモレキュラーシープの量が変わるとどれくらい吸着能力が変わるや、吸着時間を変化させた場合も調べ、どれくらいで飽和するか等を確認した。これらの実験から、純化にはモレキュラーシープ 13X 1/8 を用い、最終的な評価を行っていくこととする。

(3) 純化後の液体シンチレータの性能評価

まず、純化後のリニアアルキルベンゼンと現行の液体シンチレータの発光量の比較を行った。純化後のリニアアルキルベンゼンの発光量は、現行の液体シンチレータより約 10%、純化前に比較し約 5% 増えていた。色クエンチング、化学クエンチングによる影響が不純物の除去により低減したためと考えられる。次に 9 cm の透過率を比較したところ、380 nm 以下の短波長では、純化後のリニアアルキルベンゼンが現行の液体シンチレータを大きく上回り、また、PMT の量子効率の高い 400 nm 付近でも僅かに上回る結果となった。ただし、9 cm の測定結果は、実機サイズ(減衰長が 10 m のオーダー)を考えた時、誤差が非常に大きくなってしまう。そこで、本研究ではコーナーキューブとパイプを用いて、比較的実機に近い数メートルでの減衰長を測れる装置を作成した。この装置で測定した結果も、波長 500 nm 以下では、純化後のリニアアルキルベンゼンの方が現行液体シンチレータより減衰長が長く、また、9 cm の透過率測定の結果とは矛盾しない。波長 400 nm における減衰長は純化後のリニアアルキルベンで 10.0 ± 0.4 m となった。

ここまでに見積もった発光量、透過率及び光電子増倍管の量子効率、PPO の発光スペクトルを考慮してカムランド検出器における集光量を求めると(図 3)、純化後のリニアアルキルベンゼンは現行の液体シンチレータに比較して 1.52 ± 0.07 倍に改善することが明らかとなった。また、今までの純化方法を鑑みて、波長 388 nm で吸光を起こす原因物質の有効な候補として、オルトニトロアニリン

が挙げられる。他の吸光の原因となる不純物については、今後調べていく必要がある。

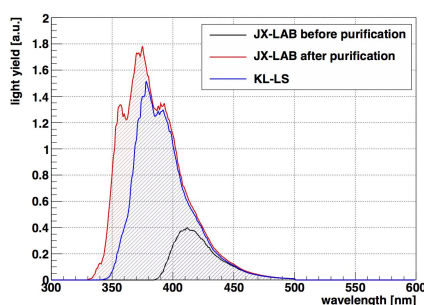


図3 カムランド検出器における集光量と波長の関係
青が現行の液体シンチレータ、黒が純化前のリニアアルキルベンゼン、赤が純化後のリニアアルキルベンゼン (引用文献①)。

<引用文献>

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).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計7件)

K. Asakura, A. Gando, Y. Gando, T. Hachiya, S. Hayashida et al., Search for double-beta decay of ^{136}Xe to excited states of ^{136}Ba with the KamLAND-Zen experiment, Nucl. Phys. A, 査読あり, 946 巻, 2016 年, 171-181
DOI: 10.1016/j.nuclphysa.2015.11.011

K. Asakura, A. Gando, Y. Gando, T. Hachiya, S. Hayashida et al., KamLAND SENSITIVITY TO NEUTRINOS FROM PRE-SUPERNOVA STARS, The Astrophysical Journal, 査読あり, 818 巻, 2016 年, 1-8
DOI: 10.3847/0004-637X/818/1/91

A. Gando, Y. Gando, H. Hanakago, H. Ikeda, K. Inoue et al., ^7Be solar neutrino measurement with KamLAND, Phys. Rev. C, 査読あり, 92 巻, 2015 年, 1-8
DOI: 10.1103/PhysRevC.92.055808

K. Asakura, A. Gando, Y. Gando, T. Hachiya, S. Hayashida et al., Search for the proton decay mode $p(-\bar{\nu})K^+$ with KamLAND, Phys. Rev. D, 査読あり, 92 巻, 2015 年, 1-10
DOI: 10.1103/PhysRevD.92.052006

K. Asakura, A. Gando, Y. Gando, T. Hachiya, S. Hayashida et al., STUDY OF ELECTRON ANTI-NEUTRINOS ASSOCIATED WITH GAMMA-RAY BURSTS USING KamLAND,

The Astrophysical Journal, 査読あり, 806 巻, 2015 年, 1-5
DOI: 10.1088/0004-637X/806/1/87

T. I. Banks, S. J. Freedman, J. Walligb, N. Ybarrolazab, A. Gando et al., A compact ultra-clean system for deploying radioactive sources inside the KamLAND detector, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 査読あり, 769 巻, 2015 年, 88-96
DOI: 10.1016/j.nima.2014.09.068

G. Keefer, C. Grant, A. Piepke, T. Ebihara, H. Ikeda et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 査読あり, 769 巻, 2015 年, 79-87
DOI: 10.1016/j.nima.2014.09.050

[学会発表](計6件)

大浦智也 他 KamLAND-Zen Collaboration, KamLAND2-Zen 実験用液体シンチレータ開発の現状、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 25 日、大阪市立大学杉本キャンパス (大阪府)

A. Gando for the KamLAND-Zen Collaboration, Search for neutrinoleless double beta decay with KamLAND-Zen, Neutrinos and dark matter in Nuclear Physics 2015, 2015 年 6 月 3 日、Jyväskylä (Finland)

大浦智也 他 KamLAND-Zen Collaboration, KamLAND2-Zen 実験用液体シンチレータ開発の現状、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 21 日、早稲田大学(東京都)

A. Gando for the KamLAND-Zen Collaboration, Recent results from KamLAND-Zen, 50th Rencontre de Moriond, 2015 年 3 月 15 日、La Thuile (Italy)

大浦智也 他 KamLAND-Zen Collaboration, KamLAND2-Zen 実験用液体シンチレータ開発の現状、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 20 日、佐賀大学 (佐賀県)

丸藤 亜寿紗 他 KamLAND-Zen Collaboration, KamLAND-Zen 純化後のデータをを用いた ^{136}Xe 二重ベータ崩壊の寿命測定、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 20 日、佐賀大学 (佐賀県)

[その他]

ホームページ等

<http://www.awa.tohoku.ac.jp/rcns/>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

丸藤 亜寿紗 (GANDO, AZUSA)

東北大学・ニュートリノ科学研究センタ

ー・教育研究支援者

研究者番号：20704399