

様 式 C - 1 9、F - 1 9 - 1、Z - 1 9 （共通）

科学研究費助成事業 研究成果報告書



令和 3 年 4 月 23 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14727

研究課題名（和文）発光フィルムを用いた極低バックグラウンド化技術の開発

研究課題名（英文）A study of low background techniques using scintillation film

研究代表者

家城 斉 (Ieki, Sei)

東北大学・ニュートリノ科学研究センター・特任助教（研究）

研究者番号：70826940

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000 円

研究成果の概要（和文）：KamLAND-Zen実験における不純物に由来する背景事象の低減を目指して、発光フィルムのR&Dと波形弁別手法の開発を行った。発光フィルムはバルーン状に成形して使用する計画で、成形の過程で溶接されること、洗浄等の作業で多少傷がつくことを再現したサンプルを作成し、十分なキセノンガスバリア性があることを測定によって確かめた。シミュレーションを基に、開発した波形弁別手法によって80%を超える確率で ^{212}Bi - ^{212}Po の連続する崩壊を同定できることを確かめ、発光フィルムが背景事象の低減と有効体積の拡大に有効であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の探索感度を改善するには低放射能化が重要である。発光フィルムを検出器として実用できれば、現状で3番目に多い背景事象である ^{214}Bi を遅延同時計測によって同定可能になり、信号探索の有効体積を広げることが可能である。本研究はフィルムが高いキセノンバリア性を持つことを確認し、高確率で背景事象を除去する波形弁別手法を開発して、発光フィルムの実用化に一步前進した。

研究成果の概要（英文）：Xe permeability of PEN film was measured to confirm that it can be used as a container. The film would be weld in the process of making balloon, that effect on permeability was taken into account by measuring a sample with welding lines.

We plan to distinguish backgrounds on the film and signal events in liquid scintillator, and sequential decay of ^{212}Bi and ^{212}Po is one of the targets. Scintillation time spectra of PEN film and that of liquid scintillator were measured, and we found clear difference while it was a measurement with a 2-inch vial. Since the real detector is a 10-meter scale, physical processes in the pathway to light detectors make serious distortion in observed waveforms. In order to consider these effects, rough detector geometry and scintillation properties are reproduced in a Monte Carlo simulator. We developed a pulse shape discrimination method and the background rejection efficiency was estimated to be more than 80%.

研究分野：素粒子物理学実験

キーワード：シンチレーター 波形弁別 散乱

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

KamLAND-Zen実験では、ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の探索を行っている[1]。これは非常に稀な事象であるため、観測するためには背景事象を徹底的に低減して感度を高めていく必要がある。本研究では検出器内に混入する不純物に由来する背景事象をターゲットとした。不純物の混入を防ぐ対策は既に最善を尽くしているため、背景事象の検出効率を高めることを目標とした。

KamLAND検出器は直径13mのバルーンを持ち、1キロトンの液体シンチレーターを内包している。さらにその内側には直径3.8mのミニバルーンがあり、バルーンの表面に付着した ^{238}U や ^{232}Th などの不純物が深刻な背景事象を生じている。特に重要な背景事象は ^{238}U の崩壊系列に属する ^{214}Bi と ^{214}Po の連続する崩壊で、 ^{214}Po の α 崩壊の発光がミニバルーンで吸収されてしまうために検出効率が低下している。

2. 研究の目的

本研究では ^{238}U 系列の ^{214}Bi -Po連続崩壊と、 ^{232}Th 系列の ^{212}Bi -Po連続崩壊の低減を目指して、(1)光るバルーンの実用化に向けたR&Dと、(2)波形弁別手法の開発に取り組んだ。

(1) 光るバルーンの実用化に向けたR&D (^{214}Bi -Po)

^{214}Po の α 崩壊を検出することができれば、 ^{214}Bi の β 崩壊と ^{214}Po の α 崩壊を遅延同時検出することによって同定することが可能になる。これを実現する方法として、ミニバルーンのフィルム材を発光性を有するものに変更することを検討している。光るバルーンを実用化するためには、フィルム材に対して(a)不純物量が少ない、(b)バルーン状に加工できる、(c)必要な光学特性を持つ、(d)バルーンがキセノンガスを保持する容器になる、という要件がある。先行研究[2]において、様々なフィルム材に対して(a)~(c)の検証が行われており、フィルム材の候補の絞り込みは済んでいる。本研究では先行研究で候補に残ったフィルム材を用いて(d)を調査した。

(2) 波形弁別手法の開発 (^{212}Bi -Po)

^{214}Bi -Poの連続崩壊などの主要な背景事象の低減が実現したとき、現状ではマイナーな背景事象が次の深刻な背景事象になる。 ^{214}Bi -Poと同様に、不純物に由来する ^{212}Bi -Poの連続崩壊も低減が難しいため将来的に問題になると懸念しており、光るバルーンを利用することによって、フィルム付近で発生する ^{212}Bi -Poの連続崩壊と、液体シンチレーター内で発生する信号事象を弁別したいと考えている。具体策としては、光るフィルムと液体シンチレーターの発光スペクトルが異なることに基づいた波形弁別を目標とした。フィルムと液体シンチレーターでは発光の原理が異なるため、その違いが発光の時定数として現れることを期待した。

3. 研究の方法

(1) 光るバルーンの実用化に向けたR&D

ミニバルーンはキセノンガスを保持する容器の役割を担うものである。フィルム材のキセノン透過率が低いことを確かめるため、図1のような装置を製作した。この装置は2つのフランジを合わせた構造になっており、各々のフランジは間に挟んだフィルムによって仕切られている。フランジに片面にキセノンを溶解させた液体シンチレーターを、他面にはキセノンを含まない液体シンチレーターを入れ、長期間保存したのち、キセノンを含まない液体シンチレーター側に透過したキセノンの量をガスクロマトグラフを用いて測定することによってフィルム材のガスバリア性を評価した。測定は、バルーン状に加工する際にフィルムが溶着されることを考慮して、溶着を施したフィルムと、無傷のフィルムを用いて行った。



図1. ガスバリア性測定装置[4]

(2) 波形弁別手法の開発

波形弁別手法の開発においては3つのことに取り組んだ。まず第一に(a)バイアルサイズでの波形弁別の可能性を検証し、次いで(b)シミュレーションを用いたKamLAND規模での波形弁別手法の開発を行った。このように段階を分けた理由は、検出器の規模によって波形弁別の難易度が異なるためである。KamLAND検出器は直径10mを超える巨大な検出器であるので、液体シンチレーターで発生したシンチレーション光は光検出器に到達するまでに散乱、吸収・再発光などの影響を受けてしまい、波形弁別に有効な時間情報の抽出がより困難なる。さらに、このような理由からシミュレーションにおいては光学パラメーターの再現性が非常に重要であり、(c)液体シンチレーターの散乱確率の測定を行った。

(a) バイアルサイズでの波形弁別

液体シンチレーターと光るフィルムの発光スペクトルを比較するため、2インチのバイアルと光電子増倍管を用いて各々の発光スペクトルを測定した。この測定では ^{222}Rn を液体シンチレーターに溶かし込み、 ^{214}Bi の β 崩壊による発光と ^{214}Po の α 崩壊による発光を検出して発光スペクトルをデジタイザーで記録した。液体シンチレーターの発光を測定する際はフィルムを用いず、フィルムの発光を測定する際には液体シンチレーターに発光溶質を溶かさないようにすることでそれぞれの発光を測定した。測定の結果、液体シンチレーターとフィルムの発光スペクトルに有意な違いが見られ、バイアルサイズでは高効率で波形弁別が可能であることがわかった。

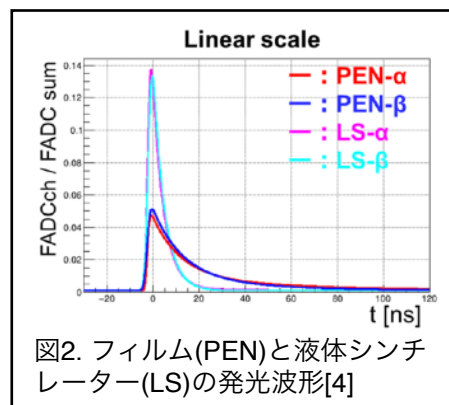


図2. フィルム(PEN)と液体シンチレーター(LS)の発光波形[4]

(b) シミュレーションを用いたKamLAND規模での波形弁別

シミュレーション(Geant4)上にKamLAND検出器を簡易的に再構成し、KamLAND規模での波形弁別が可能であるか検証を行った。波形弁別を利用して低減したい背景事象は ^{212}Bi -Poの連続崩壊である。 ^{212}Po は半減期が約0.3 μs と非常に短いため、 ^{212}Bi の崩壊と ^{212}Po の崩壊がパイルアップして1つの事象に見えてしまった場合にニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊と区別がつかない。ミニバルーンのフィルム表面上で発生する ^{212}Bi と ^{212}Po を崩壊をシミュレートすると、2つの崩壊の時間差が10ns以上の場合には2つのパルスが光検出器で観測されるため、2つのパルスを探すことが信号との弁別に有効であることがわかった。時間差10ns未満で崩壊した場合は、フィルムの発光に特徴的な遅いシンチレーション成分がどれだけ存在するかを抽出するフィットパラメーターを定義した。背景事象の検出効率と信号事象を誤判定してしまう確率を最適化するように選定条件を調整することで高い除去効率を達成できることを明らかにした。

(c) 液体シンチレーターの散乱確率の測定

液体シンチレーター中を通過する光が散乱される確率は、散乱体の大きさ、光の波長、散乱する角度などに依存する。散乱体は液体シンチレーターの溶質と不純物が考えられるので、測定を行う前に液体シンチレーターの純化を行った。光源には色素レーザーを用い、図3のように液体シンチレーターを通過させて、散乱された光子を光電子増倍管で検出することで散乱確率を測定した。この測定では、散乱確率の波長依存性を調べるために3種類の色素を使用し、光電子増倍管の位置を回転させることによって角度依存性を測定した。図4は測定装置の全体写真である。

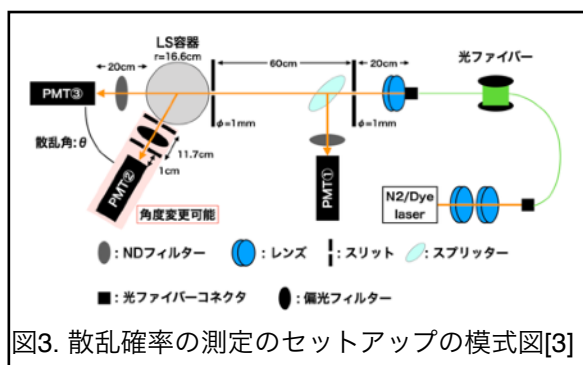


図3. 散乱確率の測定のセットアップの模式図[3]



図4. 散乱確率の測定のセットアップの写真[3]

4. 研究成果

(1) 光るバルーンの実用化に向けたR&D

フィルム材の候補に対してキセノンガスバリア性を測定した。キセノンの透過量の目標設定は、ミニバルーンが5年程度運用されるを考慮して1年間当たり1.5kg未満としている。本研究ではフィルムを42度の恒温槽に233日保管し、現実の運用状況(約15度)よりも過酷な条件下において後にキセノンの透過量を測定した。その結果、有意な量のキセロンは検出されなかったため、ガスクロマトグラフの検出限界から、キセノンの透過量はKamLAND検出器に換算して1年間当たり0.3kg未満になると見積もった。この測定からフィルムが高いキセノンガスバリア性を有することを確認できた。光るバルーンを実用化することができれば、現状において深刻な背景事象となっている ^{214}Bi -Poの連続する崩壊を大幅に削減できると期待している。

(2) 波形弁別手法の開発

^{212}Bi -Poの連続崩壊を同定することを目指して波形弁別の開発に取り組んだ。バイアルサイズの測定ではフィルムと液体シンチレーターの発光波形に有意な違いが見られた。2つの崩壊の時間差が短いほど信号事象との弁別が困難になる。KamLAND規模においては10ns以上であれば2

つのパルスになっているか否かの判定することが有効であり、10ns未満の場合は波形弁別を適用することが信号事象かどうかの識別に効果的であることを明らかにした。現状はフィルム付近の不純物を除去するために信号を探索する有効体積を狭めてしまっているが、光るバルーンの実用化し、波形弁別と組み合わせることによって有効体積をほぼ100%まで拡大することができるので、ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の探索感度の向上に貢献することが可能である。

(3) 散乱確率の測定

本測定では溶質が主要な散乱体であると考えている。溶質の大きさからRayleigh散乱が有意であるとして散乱確率を測定し、図5のような散乱長の波長依存性が見られた。理論計算から、本測定の温度と屈折率において、波長430nmの光の散乱長は約28mと算出され、統計誤差が大きいものの誤差の範囲で一致する測定結果が得られた。

光学パラメーターは液体シンチレーターの組成に依存するものであり、シミュレーションにおいてはデータとの再現性を大きく左右する要因になっている。シミュレーションは背景事象や検出器応答の理解に必須であり、機械学習を用いた研究なども進められている現在、より高い再現性が求められているので、実測によってデータドリフトに再現性の高いシミュレーションを構築していくためにも本研究は重要な意義を持っている。

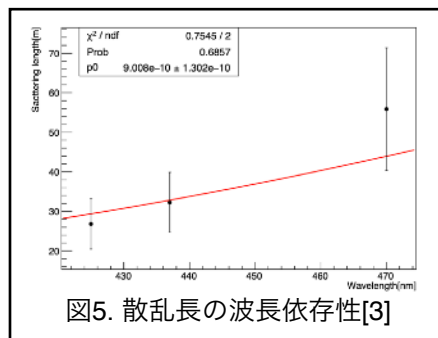


図5. 散乱長の波長依存性[3]

<引用文献>

- [1] A. Gando et al., Phys. Rev. Lett. 117, 082503 (2016)
- [2] S. Obara, Y. Gando and K. Ishidoshiro, Progress of Theoretical and Experimental Physics, Vol. 2019, Issue 7, Jul. 2019, 073H01
- [3] 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性液体シンチレーターの開発, 東北大学 修士論文, 2020
- [4] 中村陸生, KamLAND2-Zenにおける発光性バルーンでの波形弁別による ^{212}Bi -Po背景事象除去に向けた開発研究, 東北大学 修士論文, 2021

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 家城 斉
2. 発表標題 液体シンチレーターの散乱確率の測定
3. 学会等名 SMART2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村 陸生
2. 発表標題 液体シンチレーターとシンチレーションフィルムの波形弁別
3. 学会等名 SMART2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村 陸生、他KamLAND-Zen Collaboration
2. 発表標題 KamLAND2-Zen シンチレーションフィルムと液体シンチレータによる波形弁別
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村 陸生、他KamLAND-Zen Collaboration
2. 発表標題 KamLAND2-Zen: シンチレーションフィルムと液体シンチレータによる波形弁別
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1．発表者名 中村陸生、他KamLAND-Zen Collaboration
2．発表標題 KamLAND2-Zen: 発光性ミニバルーンでの背景事象除去に向けた研究開発
3．学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4．発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6．研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	和田 佳樹 (Wada Yoshiki)		
研究協力者	中村 陸生 (Nakamura Rikuo)		

7．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------