

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月28日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540307

研究課題名（和文） 液体キセノンシンチレータの発光波長の精密測定

研究課題名（英文） Precise measurement of emission spectrum 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

研究成果の概要（和文）：約1気圧の気液平衡状態の液体キセノンを $\gamma$ 線で励起し、真空紫外領域でシンチレーション発光の波長を測定した。その結果、スペクトル形状は160-190 nmの波長域で概ねガウス型であり、中心波長は $175.5 \pm 0.3$  nmと従来の報告より2.5 nm短く、ピークの幅も約10 nm（半値全幅）と従来の報告より4 nm狭いことがわかった。また、圧力を約0.9-1.3気圧で変化させても、発光波長に有意な変化は見られなかった。

研究成果の概要（英文）：The emission spectrum of liquid xenon scintillator has been measured in vacuum ultraviolet region with gamma-ray irradiation at  $10^5$  Pa under the vapor-liquid equilibrium condition. The spectrum is found out to be almost Gaussian-shaped in the wavelength range 160 to 190 nm, centered at  $175.5 \pm 0.3$  nm with about 10 nm width (FWHM) which are 2.5 nm and 4 nm shorter than conventional values respectively. No significant change has been observed in the emission spectrum in a pressure range between 0.9 and  $1.3 \times 10^5$  Pa.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学，素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：液体キセノン，シンチレータ，発光波長，放射線検出器

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 液体キセノンは、発光量が大きく応答が速いことに加え、 $\gamma$ 線に対する自己遮蔽能が高く、蒸留することによって超低放射能化が可能であるなど、優れた特性を持つシンチレータとして知られている。その特性を活かして、宇宙物理学の最重要課題である宇宙暗黒

物質の解明のため、国内の神岡鉱山で液体キセノンシンチレータを大規模に用いた暗黒物質探索（XMASS実験）が始まっていた。また、素粒子の標準理論を超える統一理論の兆候を得るため、 $\mu$ 粒子希崩壊探索（MEG実験）や2重 $\beta$ 崩壊探索が、液体キセノンシンチレータを用いて進行しつつあった。

(2) このように液体キセノンが最先端の宇宙素粒子実験に大規模に実用化されつつあった一方で、各々の実験で必要となる、液体キセノンの発光波長、レイリー散乱長などの重要な光学定数は過去に精度良い測定がなかったため、標準値が無いまま複数の異なる実験値が暫定的に引用されて利用されていた。

(3) このうち、液体キセノンのシンチレーションの発光波長については、そのスペクトルが真空紫外領域の 170-180nm 前後に広がっていることは以前から良く知られていたが、その波長として用いられていた値は、中心値で 174nm (参考文献[1]) から 178nm (参考文献[2]) まで 4 nm もの開きがあった。この違いは結果として、実験を行なう上で必要不可欠な以下の重要なパラメータの不定性を生んでいた：

①レイリー散乱長

レイリー散乱長は精度良い実測が難しいが、屈折率と波長などの実測値を用いることで理論的に計算される(参考文献[3])。理論的に波長の 4 乗に比例することに加えて、液体キセノンの場合、シンチレーションの発光波長領域内で屈折率が 1.72 ( $\lambda=168\text{nm}$ ) から 1.60 ( $\lambda=180\text{nm}$ ) まで変化する(参考文献[4]) ことから、結果として上述の 4 nm の波長の違いは、散乱長で 37cm ( $\lambda=174\text{nm}$ ) から 49cm ( $\lambda=178\text{nm}$ ) まで 20% 以上もの違いを生ずる。

②光センサの効率

光電子増倍管などの光センサの効率は、窓材料の透過率や検出部の量子効率を通じて、入射光の波長の関数として変化する。

③シンチレーション光の反射率と吸収係数

キセノン容器内面での光の反射率と吸収係数は、複素屈折率を通じて、入射光の波長の関数として変化する。

(4) 上記の各パラメータの精度が悪ければ、例えば液体キセノンをシンチレータとして大規模に用いる放射線検出器では、検出器で測られる光量分布から、シンチレーションの発生点(放射線の反応点)と総発光量を推定することなどが正確には出来ないことになる。従って、シンチレーションの発光波長を精度良く決めることは大変重要である。

(5) 従来、キセノンの発光波長の値について最も頻繁に引用された文献は、今から 48 年前の 1965 年の Jortner 等の論文(参考文献[5])であった。同論文では、同一装置で気体・液体・固体の三相で線源からの  $\alpha$  線によりキセノンを発光させ、スペクトルを分光器で測定し、発光の中心波長を液体で 178nm、気体

で 174.5nm であることを報告した。しかし、このキセノン気体の中心波長は、最近の精密な測定値である 172nm (参考文献[6]) と比べて 2.5nm も長い値である。この違いの原因は明らかではないが、Jortner 等が用いた実験装置に問題がある可能性が疑われた。

(6) Jortner の装置では、キセノン容器内の下部に励起用に取り付けられた  $\alpha$  線源の位置がシンチレーションの発光点となっていたが、そこから光が分光器に向かうまでの距離が長かったと推測され、その際に、キセノン容器内部で光が反射されたり吸収されたりすることの影響が無視出来ないほど大きかった恐れがある。もしそうであったとすれば、発光波長スペクトルの短波長側がカットされたスペクトル形状が測定されたかもしれない。結果として、液体キセノンの発光波長について波長を 2-3nm 長めに誤ったかもしれない。以上の推測が正しければ、より信頼度の高い高精度な結果を得るためには、誤差の原因となりうる内部反射と吸収とを極力排除した実験装置を構築し、さらに装置の各構成部品の光学定数の波長依存性を適切に補正して実験を行わなければならないと我々は考えた。

(7) 研究代表者等は、2003 年から 2006 年にかけて、液体キセノンの屈折率を過去に例のない世界最高精度で測定した(参考文献[4]) 経験があり、それをもとに実験装置の改造を行なうことで、懸念される内部反射と吸収を最小限に抑え、シンチレーション光について精度の高い発光波長測定を実現することが可能と考え、本研究を実施した。

参考文献

- [1] 例えば、<http://www.shef.ac.uk/physics/research/pppa/research/dm/zeplin.php> など。
- [2] 例えば、A.Baldini et al., IEEE Trans. Diele. and Elec. Insul. 13 (2006) 547 など。
- [3] 例えば、ランダウ・リフシッツ, “理論物理学教程 電磁気学 2” 東京図書(1987)など。
- [4] 例えば、S.Nakamura et al., Proc.of Workshop on Ionization and Scintillation Counters and Their Uses (2007) 27-34 など。
- [5] J.Jortner et al., J. Chem. Phys. 42 (1965) 4250.
- [6] K. Saito et al., JSAP The 68th Autumn Meeting (2007) 6p-ZC-14.

2. 研究の目的

(1) 特性の優れたシンチレータとして最先端の様々な宇宙素粒子実験に用いられつつある液体キセノンについて、シンチレーション光の波長を精度良く測定する。これにより、

シンチレーション光の波長から計算される液体キセノン中のレイリー散乱長や、種々の検出器材料の透過率や反射率、光センサの量子効率などが精度良く決定出来るようにして、液体キセノンを用いた検出器の応答の理解の精度を向上させ、様々な先端的宇宙素粒子実験の推進を目指す。

(2) 具体的な目標としては、液体キセノンシンチレータの発光波長を、誤差 1 nm 以内という実用上十分な測定精度で実測することとした。この精度を達成すれば、散乱長他の各パラメータの誤差を必要十分な精度で決めることが可能になる。

### 3. 研究の方法

(1) 実験装置は、以前に液体キセノンの屈折率の測定のために開発した装置を改造して用いた。

実験装置の光学系の主要部について、平面図を図 1 に、側面図を図 2 に示す。

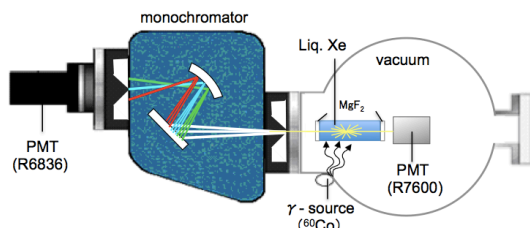


図 1 光学系の主要部の平面図

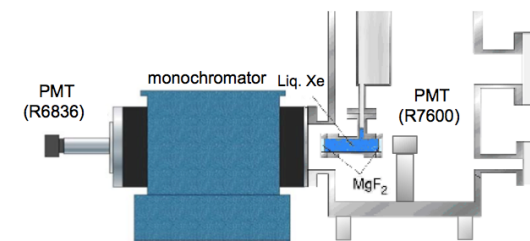


図 2 光学系の主要部の側面図

(2) 液体キセノン貯める光学セルには、逆 T 字型をした横長の円柱型セルを SUS 材で製作した。同セルの両端には、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を貫通して槽内部に導いたキセノンガス系の下端に取付けて、真空槽に横から直結させた真空紫外領域対応の分光器 (Acton, VM-502-S) の入射スリットに十分に近付けた。これにより、分光器に不要な反射光が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、出射スリットの下の

流に取り付けた光子計数用の低ノイズの光電子増倍管 (HAMAMATSU, R6836) で測光した。また、もう一方の窓から出た光は、窓の近くの真空槽内に置かれた光電子増倍管 (HAMAMATSU, R7600) により測光した。

各光電子増倍管からの信号は最初にそれぞれ 2 つに分けて、そのままのアナログ信号と時間情報を持つ NIM 信号を生成し、両方の NIM 信号が同時に発生した時のみ、アナログ信号を ADC で処理して CAMAC で PC に取り込むデータ取得を行なった。この方法により、常温でも光電子増倍管自身の熱ノイズの影響をじゅうぶんに抑制した光子計数が可能になり、高い SN 比で微弱な光の波長スペクトルを取得することが可能になる。(図 3, 参考文献[7])

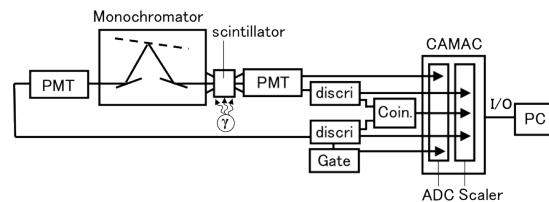


図 3 信号処理回路系の概要

(3) 液体キセノンは、図のように真空槽のすぐ脇に固定した  $^{60}\text{Co}$  線源 (1.8 MBq) からの 1.17MeV および 1.33 MeV の  $\gamma$  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., >99.999%) を用い、実験の開始時に純化装置 (SAES, St707Pill/4-2/50) を通して純化したのち、パルス管冷凍機 (IWATANI, PDC08Y) を用いて約  $-105^\circ\text{C}$  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) 実験系は、2 つの光電子増倍管からの時間情報の NIM 信号の同時計測における時間幅や、分光器のスリット幅とスリット高、測定時間など、様々な設定で比較して良い条件を探した。

また、光学系の波長校正として、主に、重水素光源からの 184.9nm の線スペクトルを用いて、液体キセノンのデータ取得の前後と途中で随時、複数回の校正作業を実施した。

(5) データ取得は、分光器の設定波長を約 1nm 前後の間隔で 160-190nm の間でスキャンし、1 波長当たりおよそ 1,000-1,500 秒間測光した。そして、このような一連のデータ取得を、キセノン状態を変化させるなどして、複数回繰り返した。取得した生データは、光

学系の各部材の波長依存性の影響を補正し、分光器の有限のスリット幅の影響を逆たみ込みで評価して、真の波長スペクトル形状を求めた。

#### 参考文献

[7] J.E.McMillan and C.J.Martoff, Meas. Sci. Technol. 17 (2006) 2362-2366

#### 4. 研究成果

(1) 気液平衡状態の約1気圧 ( $10^5$ Pa) の液体キセノンについて、 $\gamma$ 線励起した時のシンチレーション発光の波長を真空紫外領域(波長範囲: 160-190 nm) で高い精度で測定することに成功した。

(2) 本研究で得られた典型的な波長スペクトルを図4に示す。

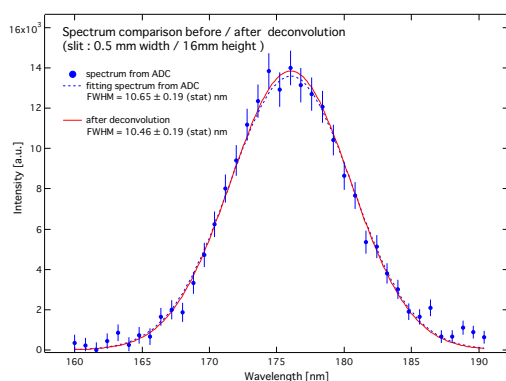


図4 液体キセノンの発光スペクトル

液体キセノンシンチレータの発光波長について、本研究で現在までに明らかになったことは、主に次の通りである:

- ① スペクトル形状は概ねガウス型である。
- ② ピーク波長は、 $175.5 \pm 0.3$  nm であり、過去の報告値より 2.5 nm 短い。
- ③ ピークの幅は、約 10 nm (FWHM) であり、過去の報告値より約 4 nm 狭い。
- ④ 圧力は約 0.9-1.3 気圧で変化させても、発光波長に有意な変化は見られない。

(3) 得られた上記の発光波長の値と、我々が以前に得た屈折率の値とから液体キセノン中のシンチレーション光の散乱長を計算すると約 40cm となり、最近の実測値である約 60cm と有意に食い違う。この原因として、従来見過ごされてきた、真空紫外領域よりも長波長領域での発光成分の存在が疑われることから、近紫外・可視・赤外領域までの発光の有無を高感度で測定することが急がれる。

(4) なお、本研究で用いた液体キセノンは、原料のガスを純化装置で必要十分に純化し

たと考えており、不純物の発光スペクトルへの影響は無視出来ると考えているが、慎重を期すためには、不純物の定量化を行なうテスト実験を実施することを検討中である。

#### 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2件)

- ① FUJII Keiko, TORIGOE Yui, ENDO Yuya, NAKAMURA Shogo, TAWARA Hiroko, SASAKI Shinichi, KASAMI Katsuyu, MIHARA Satoshi, SAITO Kiwamu, HARUYAMA Tomiyoshi, MEASUREMENTS FOR EMISSION SPECTRUM OF LIQUID XENON, Proceedings of the 25th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, 査読有, 2011, 84-89, <http://www-lib.kek.jp/tiff/2011/1125/1125008.pdf>
- ② FUJII Keiko, NAKAMURA Shogo, KATADA Yuki, TORIGOE Yui, ENDO Yuya, YAGISAWA Kazuho, KASAMI Katsuyu, SAITO Kiwamu, SASAKI Shinichi, TAWARA Hiroko, HARUYAMA Tomiyoshi, MEASUREMENTS FOR EMISSION SPECTRUM OF LIQUID XENON, Proceedings of the 24th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, 査読有, 2010, 82-88, <http://www-lib.kek.jp/tiff/2010/1025/1025010.pdf>

[学会発表] (計10件)

- ① 村山育子, シンチレーション光の測定回路における時間特性の評価, 日本物理学会第68回年次大会, 2013年3月28日, 広島大学
- ② 中村正吾, 液体キセノンのシンチレーションの減衰時間の研究, 平成24年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会, 2012年12月7日, 東京大学柏キャンパス 柏図書館メディアホール
- ③ 村山育子, 液体キセノンシンチレーション光の減衰時間特性の測定, 日本物理学会2012年秋季大会, 2012年9月13日, 京都産業大学
- ④ 中村正吾, 液体キセノンのシンチレーションの減衰時間の研究, 平成23年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会, 2011年12月16日, 東京大学宇宙線研究所

- ⑤ 藤井景子, 液体キセノンの発光スペクトルの測定-5, 日本物理学会 2011 秋季大会, 2011 年 9 月 16 日, 弘前大学
- ⑥ 村山育子, 光子計測 (フォトンカウンティング)によるシンチレーション光の時間分解分光法, 日本物理学会 2011 秋季大会, 2011 年 9 月 16 日, 弘前大学
- ⑦ 遠藤裕也, 液体キセノンの発光スペクトルの精密測定, 第 71 回応用物理学会学術講演会, 2011 年 8 月 30 日, 山形大学
- ⑧ 中村正吾, 液体キセノンの発光スペクトルの測定-3, 第 58 回応用物理学会学関係連合講演会, 2011 年 3 月 9 日, 第 58 回応用物理学会学関係連合講演会講演予稿集 (DVD)
- ⑨ 鳥越唯, 液体キセノンの発光スペクトルの測定, 第 25 回研究会「放射線検出器とその応用」, 2011 年 2 月 2, 3 日, 高エネルギー加速器研究機構
- ⑩ 中村正吾, 液体キセノンの発光スペクトルの研究, 平成 22 年度東京大学宇宙線研究所共同利用研究成果発表会, 2010 年 12 月 17 日, 東京大学宇宙線研究所

[その他]

ホームページ等

[http://kenkyuin.eng.ynu.ac.jp/enterprise/study\\_group/study\\_group1/imgs/study\\_group01-25.pdf](http://kenkyuin.eng.ynu.ac.jp/enterprise/study_group/study_group1/imgs/study_group01-25.pdf)

## 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

( )

研究者番号：

### (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