

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 20 日現在

機関番号：14501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23654089

研究課題名(和文)原子炉モニタ用の水を主成分としたGd入り液体シンチレータの開発

研究課題名(英文)R&amp;D of water-based liquid scintillator with Gd as a reactor anti-neutrino monitor

研究代表者

原 俊雄(Hara, Toshio)

神戸大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50156486

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円、(間接経費) 870,000円

研究成果の概要(和文)：IAEA(国際原子力機関)の保障措置の原子炉ニュートリノモニタとして、不燃および不揮発の水を主成分としたGd入り液体シンチレータの開発を行った。

界面活性剤または市販の純石けんを用いて発光剤(PP0)を水に溶かし光量を測定した。70%水+30%界面活性剤(SDS)+30g/L発光剤(PP0)+0.2%Gdの液体シンチレータでは、 $9.55 \pm 0.38$ [pe]の光量が得られた。これは、有機物が主成分の液体シンチレータの約1/30の光量であった。50%水+50%純石けん+30g/L発光剤(PP0)は、 $6.428 \pm 0.074$ [pe]の光量が得られた。1年間での経年変化(劣化)は認められなかった。

研究成果の概要(英文)：As a reactor neutrino monitor for the safeguards of IAEA (International Atomic Energy Agency), the water-based liquid scintillator with gadolinium(Gd) which is nonflammable and nonvolatile was developed.

The luminescence agent(PP0) was melted in water using a surface-active agent or commercial pure soap, and the light yield was measured using Compton edge electrons by gamma-rays from a cobalt 60. In the liquid scintillator of 70%water+30%surface-active agent(SDS)+30g/L luminescence agent(PP0)+0.2%Gd, the light yield was  $9.55 \pm 0.38$  [pe] which is 1/30 of an organic matter based liquid scintillator. In the liquid scintillator of 50%water+50% commercial pure soap+30g/L luminescence agent(PP0), the light yield was  $6.428 \pm 0.074$  [pe]. Aging of the water-based liquid scintillator mentioned above for one year was not appeared.

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：液体シンチレータ 界面活性剤 純石けん

### 1. 研究開始当初の背景

素粒子の標準理論を超える究極の理論への挑戦として、ニュートリノの混合角 ( $\theta_{13}$ ) 測定が主な目的の原子炉ニュートリノ振動実験が、世界の3ヶ所 (Double Chooz, Daya Bay, RENO) で企画され測定を開始しようとしている。これらの実験では、いずれも有機溶媒を主成分としたGd (ガドリニウム) 入り液体シンチレータを使用している。本研究者は、KASKA/Double Chooz 実験に参加し、科学研究費補助金 (基盤C、H17~H18 および H19~H20) の支給を受けて、有機溶媒を主成分としたGd (ガドリニウム) 入り液体シンチレータの開発を行ってきた。有機溶媒は可燃性であるために、原子力発電所の安全性が要求される原子炉の近傍での使用は困難である。さらに、揮発性が高く、人体に有害である。また、Gdは有機溶媒に溶けにくく、小濃度で使用しているのが現状である。

一方、IAEA (国際原子力機関) の保障措置として、原子炉ニュートリノを測定する原子炉モニタの必要性が近年ますます高くなってきている。IAEAは、移動式の測定装置で、原子炉に近接しても使用可能であることを要求している。

以上の現状を考慮し、以上の要求を満足する、Gdが溶解して且つ不燃・不揮発で人体に有害でない「水を主成分としたGd入り液体シンチレータ」の開発を行う

### 2. 研究の目的

原子炉ニュートリノの測定は、ニュートリノ振動実験のみならず、IAEA (国際原子力機関) の保障措置としての原子炉モニタとしても重要である。原子炉モニタとして要求される要素としては、

- (1) 不燃および不揮発であること (なぜなら、原子炉近傍での使用、またはトラック等に積載して移動可能であること)
- (2) Gd (ガドリニウム) が溶解すること (なぜなら、ニュートリノ反応を同定するために、遅延同時計測をする必要があるから)

以上の要求を満たすために、従来の有機溶媒を主成分とした液体シンチレータではなく、未だ実用化されていない「水を主成分としたGd入り液体シンチレータ」の開発を行う。

### 3. 研究の方法

- (1) 発光剤 (PPO等) が溶ける水を主成分とした溶液を開発する。その溶液として、水 (重量比で70%以上に保持) に界面活性剤を溶かした溶液を試験する。

次に、その溶液として、水 (重量比で70%以上に保持) に市販の純石けんを溶かした溶液を試験する。

- (2) 発光量測定装置を構築し、 $^{60}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線を照射して、光量を測定する。
- (3) 発光した液体シンチレータに、Gd (硫

酸ガドリニウム) を溶解し、「水を主成分としたGd入り液体シンチレータ」の発光量を測定する。

- (4) 1年間保管した液体シンチレータの発光量を測定し、1年間の経年変化を調べる。

### 4. 研究成果

#### (1) 液体シンチレータの光量測定法

液体シンチレータからの光量は、 $^{60}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線を照射して測定する。図1に測定の設定アップを示す。

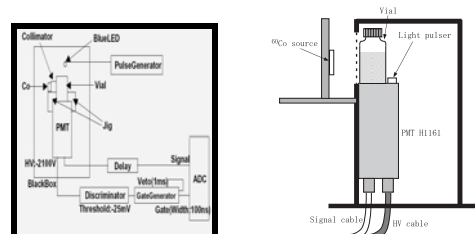


図1 光量測定の設定アップ

光電子増倍管の光電面にバイアル (ガラス瓶) に入れた液体シンチレータを置き、バイアルの側面から $^{60}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線を照射する。

図2に $^{60}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線を照射したときの光量 (ADC) 分布を示す。 $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線のエネルギーはおおよそ1MeVなのでコンプトン散乱が起こりやすい。図2のヒストグラムに見られるコンプトンエッジから液体シンチレータの光量を次の手順で求める。

- ① ヒストグラムのコンプトンピーク部にガウス関数をフィットする。または、水平部分を求める。
- ② ガウス関数の最大値の半値に直線を引き、ヒストグラムの交点の値を求める。または、水平部分の半値に直線を引き、ヒストグラムの交点の値を求める。
- ③ この交点の所の光量 (ADC) 値をコンプトンエッジの光量 (ADC) 値とみなす。

図2の矢印が指すADC値がコンプトンエッジの光量 (ADC) 値である。

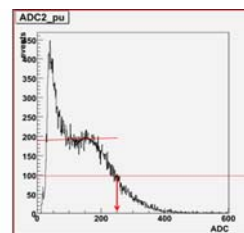


図2  $\gamma$ 線を照射した光量 (ADC) 分布

以上の方法で求めたコンプトンエッジの光量 (ADC) 値を液体シンチレータの光量値として、液体シンチレータの性能を評価する。

異なる液体シンチレータの光量を比較するためには、ADC値で表された光量値を光電子数に変換しなければならない。そこで、LEDを使ってADC値と光電子数との関係を求める。すなわち、光電子数がポアソン分布に従うとすると、以下の関係が成り立つので、

$$\text{光電子数} = \left( \frac{\text{Mean}}{\text{Sigma}} \right)^2$$

LEDの光量分布の Mean (平均値) と Sigma (標準偏差、 $\sigma$ ) から、上式に従い光電子数を出す。LEDの明るさを変え、ADC値と光電子数の関係を表したグラフを図3に示す。これよりADC値から光電子数への変換パラメータを得る。以上の事を、LEDキャリブレーションと呼ぶことにする。

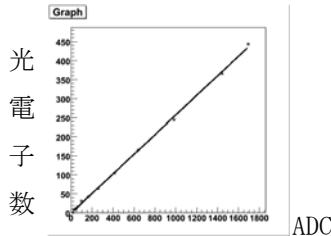


図3 ADC値と光電子数の関係

(2) ガンマ線のエネルギーとコンプトンエッジ値 (シミュレーション)

コンプトンエッジ値が、照射したガンマのエネルギーをよく再現していることを、シミュレーションによって確かめた。

$^{60}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線をバイアルに封じた液体シンチレータに照射したとき、 $\gamma$ 線によるコンプトン電子が落とすエネルギー分布 (シミュレーション) を図4に示す。

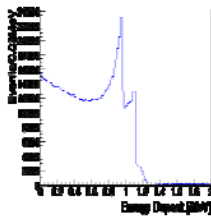


図4 コンプトン電子が落とすエネルギー分布 (シミュレーション)

$^{60}\text{Co}$ からの二つの $\gamma$ 線 (1.17MeV と 1.33MeV) のコンプトンエッジのピークが見えているのが分かる。

図5は、エネルギー分解能が  $10\%/\sqrt{E}[\text{MeV}]$  で測定したときのエネルギー分布 (シミュレーション) である。二つの $\gamma$ 線 (1.17MeV と 1.33MeV) のコンプトンエッジのピークが混じり合っているのが分かる。

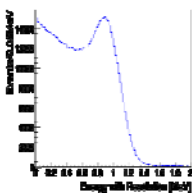


図5 エネルギー分解能が  $10\%/\sqrt{E}[\text{MeV}]$  で測定したときのエネルギー分布 (シミュレーション)

実際に測定装置を構築し、実測したエネルギー分布が図6に示される。

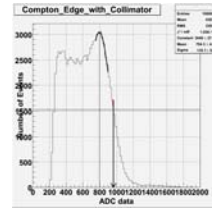


図6 コンプトン電子が落とすエネルギー分布 (実測)

実測 (図6) とシミュレーション (図5) は良くあっており、本研究の測定装置が正しく稼働していることを示している。

次に、コンプトンエッジ値が、 $\gamma$ 線のエネルギーを正しく反映していることを確かめる。図7は、測定したときのコンプトンエッジ値の変化を表したものである。ピーク値は、分解能が悪くなるにしたがって小さくなっているが、コンプトンエッジ値は1.12MeVあたりではほぼ変わらない。この1.12MeVは、丁度1.33MeVの $\gamma$ 線に相当する。

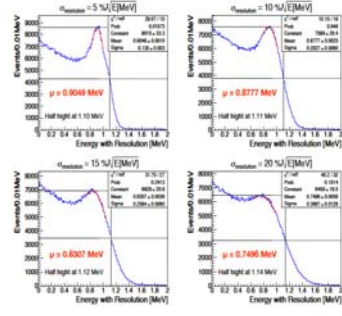


図7 測定したときのコンプトンエッジ値の変化

(3) 光量測定結果

① 光量基準値

光量の基準値 (最大値) として、良く光ることが分かっているプソイドクメンに PPO を 3g/L 溶かしたものを採用する。その光量測定結果 (ADC分布) を図8に示す。

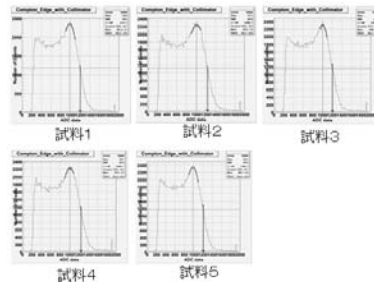


図8 プソイドクメン+ 3g/L PPO の光量コンプトンエッジ平均値:  $316.6 \pm 2.5$  [pe]

これより、光量の基準値 (最大値) を光電子数にして  $316.6 \pm 2.5$  [pe] とした。

開発を進めている「水を主成分としたG d

入り液体シンチレータ」の発光量の目標値は、光量の基準値（最大値）の概ね 1/10 以上、30[pe]以上である。

② 水に界面活性剤を溶かした溶液の光量  
界面活性剤（ドデシル硫酸ナトリウム SDS）と発光剤（PPO）の量を変えて測定した光量分布を図 9、図 10、図 11 に示す。

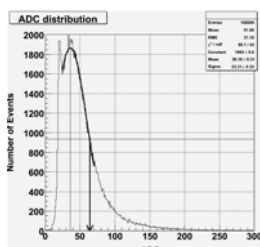


図 9 10%SDS + 90% H<sub>2</sub>O + 10g/L PPO の光量  
コンプトンエッジ値：6.0 [pe]

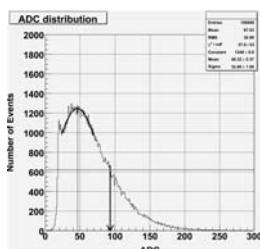


図 10 20%SDS + 80%H<sub>2</sub>O + 10g/L PPO の光量  
コンプトンエッジ値：9.8 [pe]

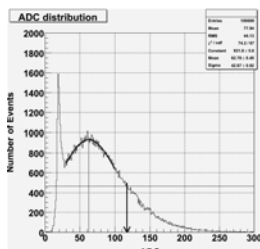


図 11 30%SDS + 70% H<sub>2</sub>O + 30g/L PPO の光量  
コンプトンエッジ値：11.6 [pe]

界面活性剤（SDS）を増量すると発光剤（PPO）も多く溶け、光量は増加するのが分かる。現状では、30%SDS + 70% H<sub>2</sub>O + 30g/L PPO が、界面活性剤と発光剤が水に溶ける最大量で、そのときの光量は、光電子数にして 11.6 [pe] であった。

液体シンチレータの作成手法と測定による光量のばらつきを見るために、図 11 と同じ条件の溶液を複数作成し、光量を測定した。それを図 12 に示す。

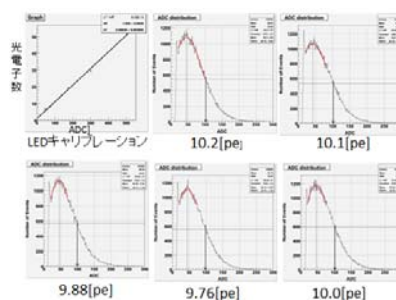


図 12 30%SDS + 70% H<sub>2</sub>O + 30g/L PPO の光量  
コンプトンエッジ平均値：9.99 ± 0.17 [pe]

その平均値は、9.99 ± 0.17 [pe] であった。この値は、以前に定義した光量の基準値（最大値）の約 1/30 であり、研究の目標値には達していない。

次に、図 12 に示す液体シンチレータに、ガドリニウム（硫酸ガドリニウム）を重量比にして 0.2% 加えた溶液で光量測定をした。原子炉ニュートリノ振動実験である Double Chooz 実験におけるガドリニウム量は 0.1% であるので、この量は実験を進めるに当たり十分な量である。その光量測定結果を図 13 に示す。

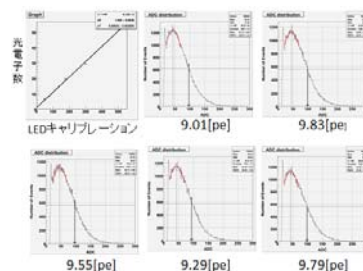


図 13 30%SDS + 70%H<sub>2</sub>O + 30g/L (H<sub>2</sub>O) PPO  
+ 0.2%Gd の光量  
コンプトンエッジ平均値：9.55 ± 0.38 [pe]

その光量の平均値は、ガドリニウムなし（9.99 ± 0.17 [pe]）の時とほぼ同じ 9.55 ± 0.38 [pe] であった。

③ 水に純石けんを溶かした溶液の光量

界面活性剤の代わりに、市販されよく使われていて安全性が確認されている“純石けん”を使用した。純石けんには、動植物のあぶら（油脂）を水酸化ナトリウム（苛性ソーダ）で煮たもの「脂肪酸ナトリウム（ソーダ石けん）」と、水酸化カリウム（苛性カリ）で煮たもの「脂肪酸カリウム（カリ石けん）」がある。使用した純石けんは、35%が脂肪酸カリウムの「カリ石けん」であり、他は少量の香料以外は水で構成されている。水に対して PPO が 30g/L 溶ける洗剤量を決める手法で作成した溶液は、50%洗剤（カリ石けん） + 50%H<sub>2</sub>O + 30g/L (H<sub>2</sub>O) PPO である。このうち脂肪酸カリウムは、20% 程度であり、水が約 80% の溶液になっている。この溶液の光量測定結果を図 14 に示す。

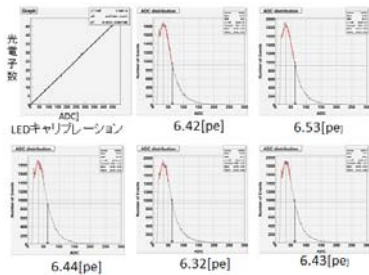


図 14 50%洗剤+50% $H_2O$ +30g/L ( $H_2O$ ) PPO の光量  
コンプトンエッジ平均値 : 6.428±0.074[pe]

コンプトンピークが確認され、その光量は界面活性剤 (9.99±0.17 [pe]) に比べると少ないが、6.428±0.074[pe] であった。

次に、図 14 に示す液体シンチレータに、ガドリニウム (硫酸ガドリニウム) を重量比にして 0.2% 加えることを試みたが、ガドリニウムは溶解しなかった。硫酸ガドリニウムは水には 2% 程度まで溶解するので、再度試みる必要がある。

#### ④ 1年間の経年変化 (劣化)

図 12 に示す液体シンチレータ (30%SDS+70% $H_2O$ +30g/L PPO、光量 12.0 [pe]) の1年間の経年変化 (劣化) を調べた。1年間、室温 (18°C~25°C) で保管すると、半透明で針状の結晶が析出した (図 15a)。



図 15a



図 15b

図 15a 結晶が析出した液体シンチレータ

図 15b 結晶が溶解した液体シンチレータ

この結晶が析出した状態で光量測定したが、コンプトンピークは確認できなかった (図 16)。

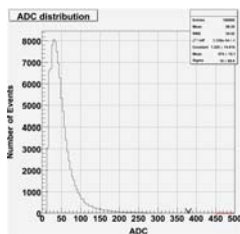


図 16 結晶が析出した液体シンチレータの  
光量 (コンプトンピークは見られない)

この結晶が析出した状態のバイアルを少し振ると、すぐに結晶は消え (溶解し) て透明な状態になった (図 15b)。この結晶が溶解した状態で光量測定した結果を図 17 に示す。

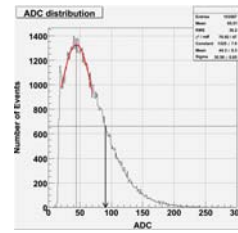


図 17 結晶が溶解した液体シンチレータの  
光量 コンプトンエッジ値 : 9.18[pe]

コンプトンピークが現れ、光量測定の結果は 9.18[pe] であり、1年前の光量 11.6 [pe] と比べると、誤差を±1.0[pe] と見積もれば、経年変化が認められるとは言えない。

#### ⑤ 第二発光体 Bis-MSB の効果

第一発光体として PPO がよく使われるが、それに加えて第二発光体として、Bis-MSB が使われることがある。これは、第一発光体からの光の波長を変換して溶媒による光の再吸収を防ぐ役割がある。Bis-MSB は大変溶解しにくく、例えば、Double Chooz 実験では、PPO の 6 g/L に対して、Bis-MSB は 20mg/L と大変少量を使っている。本研究では、300mL から 600mL の少量の溶液を扱っており、溶解する Bis-MSB の量は少なすぎて定量的に取り扱うことが非常に困難である。そこで、30mg/L を加えて攪拌し、その後濾過した溶液を使用した。したがって、Bis-MSB の溶解量は 30mg/L 以下であり、絶対値は分からない状態での光量測定である。

30%SDS+70% $H_2O$ +30g/L ( $H_2O$ ) PPO に Bis-MSB を加えた液体シンチレータの光量測定結果を図 18 に示す。

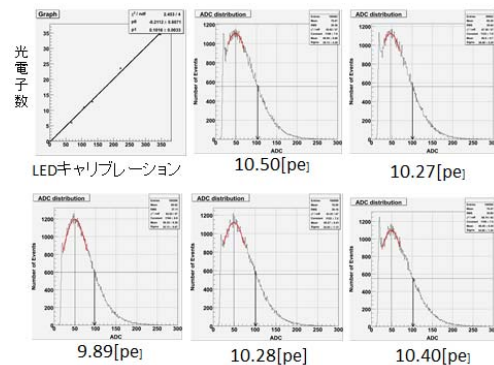


図 18 30%SDS+70% $H_2O$ +30g/L ( $H_2O$ ) PPO に  
Bis-MSB を加えた液体シンチレータの  
光量  
コンプトンエッジ平均値 : 10.27±0.23[pe]

光量の平均値は 10.27±0.23[pe] であり、Bis-MSB なしの場合の 9.99±0.17 [pe] 比べて、Bis-MSB の有意な効果は見られなかった。

次に、30%SDS + 70% $H_2O$  + 30g/L ( $H_2O$ ) PPO + 0.2%Gd に Bis-MSB を加えた液体シンチレータの光量測定結果を図 19 に示す。

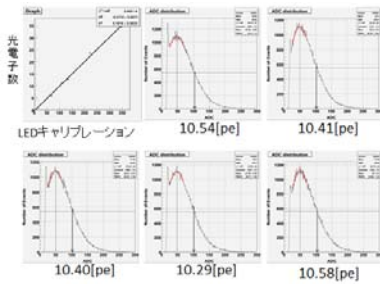


図 19 30%SDS + 70% $H_2O$  + 30g/L( $H_2O$ )PPO + 0.2%Gd に Bis-MSB を加えた液体シンチレータの光量  
 コンプトンエッジ平均値：10.44±0.12[pe]

光量の平均値は、10.44±0.12[pe]であり Bis-MSB なしの場合の 9.55±0.38[pe]と比べて Bis-MSB の有意な効果は見られなかった。

更に、市販の純石けんを使用した 50%洗剤+50% $H_2O$ +30g/L PPO に Bis-MSB を加えた液体シンチレータの光量測定結果を図 20 に示す。

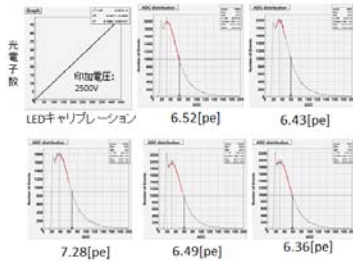


図 20 50%洗剤+50% $H_2O$ +30g/L PPO に Bis-MSB を加えた液体シンチレータの光量  
 コンプトンエッジ平均値：6.62±0.38[pe]

光量の平均値は 6.62±0.38[pe]であり、 Bis-MSB なしの場合の 6.428±0.074[pe]と変わらず、 Bis-MSB の効果はなかった。

#### ⑥ まとめ

- ・水を主成分とした液体シンチレータの開発を行った。
- ・界面活性剤（ドデシル硫酸ナトリウム SDS）＋水＋発光体（PPO）では、光量約 10 [pe] が得られた。
- ・市販の洗剤（カリ石けん）＋水＋発光体（PPO）では、光量 6.5[pe]（SDS の 6～7 割程度）が得られた。
- ・1 年間の経年変化（劣化）はなかった。
- ・ガドリニウム（硫酸ガドリニウム）添加での光量変化はなかった。
- ・Bis-MSB の効果は認められなかった。
- ・市販の洗剤（カリ石けん）＋水＋発光体（PPO）には硫酸ガドリニウムは溶けない。

#### 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 0 件）

〔学会発表〕（計 3 件）

(1) Atsumu Suzuki

“R&D of water-based liquid scintillator as a reactor anti-neutrino detector”  
 International Conference on Technology and Instrumentation in Particle Physics  
 2014 年 6 月 3 日（Amsterdam, The Netherlands）

(2) 原 俊雄

“水をベースにした液体シンチレータの開発Ⅱ” 日本物理学会  
 2014 年 3 月 30 日 東海大学湘南キャンパス

(3) 原 俊雄

“水をベースにした液体シンチレータの開発” 日本物理学会  
 2013 年 3 月 26 日 広島大学

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：  
 発明者：  
 権利者：  
 種類：  
 番号：  
 出願年月日：  
 国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：  
 発明者：  
 権利者：  
 種類：  
 番号：  
 取得年月日：  
 国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

原 俊雄 (Hara, Toshio)  
 神戸大学・大学院理学研究科・准教授  
 研究者番号：50156486

(2) 研究分担者

鈴木 州 (Suzuki, Atsumu)  
 神戸大学・大学院理学研究科・助教  
 研究者番号：20243298

(3) 連携研究者

( )

研究者番号：