

# 修士論文

# 液体Ar光検出器の高感度化 ~TPB 蒸着技術の最適化とTSV-MPPC Arrayの実装~

# 2019/02/28

早稲田大学 先進理工学研究科 物理学及応用物理学専攻 寄田浩平研究室

5318A002-6 青山一天

## 概要

暗黒物質は天文学的観測により,その存在が強く示唆されているが,未だにその直接的 発見には至っていない。その中で,WIMP (Weakly Interactive Massive Particle) は暗黒 物質の有力候補であり,多種多様な標的物質を用いて探索されている。

ANKOK 実験は液体アルゴン (以下,LAr) 光検出器を用いた暗黒物質直接探索実験で, 質量が 10 GeV/c<sup>2</sup> 付近の探索を目的としている。WIMP 探索実験では環境ガンマ線など の背景事象の除去が必須だが,Ar には放射性同位体の <sup>39</sup>Ar が存在し,シールドでは取り 除けない背景事象になるため,解析的に除去する必要がある。ANKOK 実験では Ar と検 出器への入射粒子の散乱を LAr 光を見ることで検出している。LAr 光は <sup>39</sup>Ar イベントと WIMP-Ar 原子核反跳イベントで蛍光波形が異なるため波形弁別 (PSD) をすることがで きる。検出光量が多いほど PSD 能力は高くなるため,光収集効率を改善することにより WIMP 探索感度が向上する。そこで,光収集効率を最大化することにより探索感度を向 上させる研究を行った。本論文では,以下の 2 項目について報告する。

(1) TPB 蒸着技術の最適化と世界最大光量の達成

LAr 光の波長は 128 nm の真空紫外光と非常に短く,直接検出することが困難である。そのため,検出器の内壁全体に波長変換材の 1,1,4,4-tetraphenyl-1,3-butadiene (以下,TPB) で可視光 (420 nm) に変換してから読み出している。TPB は真空引きした容器内で昇華させて基板に付着させる真空蒸着法で塗布をしている。TPB 蒸着膜での波長変換によるLAr 光の検出では,128 nm 光の波長変換効率と,光検出デバイス窓面での可視光透過率を考慮して蒸着量を決定する必要がある。そこで,真空蒸着装置を構築し蒸着量の最適化を行った。水晶振動子マイクロバランスで蒸着量を測ることにより蒸着の再現性を保証している。また,TPB 量と変換効率/透過率の関係を測定することで,波長変換効率はTPB が25 µg/cm<sup>2</sup> 以上で飽和し,透過率はTPB 量の増加に伴い減少することが分かった。次に,小型のLAr 検出器を構築し、外部からガンマ線を照射することにより検出光量を測定した。光検出デバイスには QE が 30%程度の PMT を 2 本用いており,最適な TPB 量を蒸着している。検出光量は 11.6±0.4 p.e./keVee で,現状の世界最大光量を達成した。また,LAr 光の発光量がおよそ 40 p.e./keVee であるので,約 11.5 p.e./keVee は,QE が 30%の PMT を用いた場合のおよそ最大の検出光量に相当する。以上より,検出光量は主 に PMT の検出効率によってのみ制限される状況まで光収集効率を改善することができた。

### (2) TSV-MPPC Array の実装

半導体検出器のTSV-MPPC (HAMAMATSU) は PMT よりも高い光検出効率を持つた め,MPPCの使用によって,より大きな検出光量が期待できる。LAr 光検出器に実装する 場合,87 Kの極低温環境下で駆動する必要がある。また,MPPCで PMT と同程度の受光 面積を確保するためにはチャンネル数の増大は避けられない。そこで,MPPCのチャンネ ル接続回路を実装した信号読み出し基板を製作した。基板には4枚のTSV-MPPC Array をアッセンブリでき,1枚で64 個の MPPC を16ch の信号線で読み出せる。本論文では, 簡易的な検出器を構築しLAr 試験を行った。LAr 環境下で全チャンネル駆動することを 確認し,26.1±5.2 p.e./keVee という,従来のLAr 検出器光量の2倍以上の収集効率が 得られた。

# 目 次

1	暗黒	【物質 1
	1.1	暗黒物質の存在
	1.2	暗黒物質の探索手法 1
	1.3	Weakly Interacting Massive Particle
		1.3.1 宇宙初期における WIMP の生成と残存量
	1.4	WIMP 直接探索実験 4
		1.4.1 WIMP-核子弾性散乱の計測率 4
		1.4.2         WIMP 直接探索の世界的現状          8
<b>2</b>	液体	Ar 光検出器 10
	2.1	Ar 諸性質と LAr 蛍光の検出
	2.2	LAr の発光過程
	2.3	LAr 蛍光の波形弁別 15
3	AN	KOK 実験 18
	3.1	物理目標
	3.2	液体 Ar 実験セットアップ 19
		3.2.1 LAr 容器と充填・循環系
		3.2.2 環境モニター
		3.2.3 DAQ システム 20
		3.2.4 環境 $\gamma$ 線遮蔽シールド
		3.2.5 LAr 光検出器
	3.3	ANKOK 実験の背景事象
		3.3.1 外部背景事象 22
		3.3.2 内部背景事象 23
	3.4	LAr 検出器の光収集効率
	3.5	本研究の主題
		3.5.1 LAr 検出器大光量化の意義 26
		3.5.2         本研究の内容
4	TP	B 蒸着技術の最適化 29
	4.1	波長変換材と真空蒸着法 29
		4.1.1 波長変換材-TPB 29
		4.1.2 真空蒸着法
	4.2	真空蒸着装置と蒸着プロセス32
		4.2.1 TPB 真空蒸着装置 32
		4.2.2 蒸着プロセス 34
	4.3	TPB 表面状態
	4.4	QCM センサによる TPB 蒸着量の測定 35
		4.4.1 水晶振動子マイクロバランス (QCM) 36

		4.4.2	QCM 測定セットアップ 3	7
		4.4.3	QCM のキャリブレーション	8
		4.4.4	るつぼ内の TPB 量と蒸着量の関係性	9
	4.5	触針式		1
	4.6	蒸着量	と波長変換効率/可視光透過率の関係評価4	3
		4.6.1	波長変換効率測定のセットアップ 4	3
		4.6.2	可視光透過率測定のセットアップ4	5
		4.6.3	波長変換効率と可視光透過率の測定結果4	6
	4.7	まとめ	と考察	7
		4.7.1	本章のまとめ	7
		4.7.2	TPB 蒸着量の決定 4	7
		4.7.3	蒸着の一様性	7
		4.7.4	今後の課題 4	8
5	D1/	[17] た田		n
J	<b>F</b> 1V	LI で Π - - - - ー ー ー		ອ ດ
	9.1	511	1 切刊 I Ar 光給中界	9 0
		5.1.1 5.1.9	1 相至 LAI 元俠山福	9 0
	59	0.1.2 DMT (	veto 陝山谷	1
	5.2 5.2	1 1/11、	$Gam ~ {}^{\prime} {}^{\prime}$	1 2
	0.0 5 4	成初任	17 脉源による九候山効率の計画	о л
	0.4	よこの 5 / 1	ころ宗	4 1
		54.1	平早のよこの	4 1
		0.4.2 5 4 9	$\Gamma M I Gall イャリノレーションナム$	4 5
		5.4.5 5.4.4	収集儿里に刈りる (快山船) イスの 影音	ีย ธ
		0.4.4	他天歌とのIFD ※有重の比較	0
6	$\mathbf{TS}$	V-MPI	PC Arrayの実装 50	6
	6.1	Multi	Pixel Photon Counter	6
		6.1.1	MPPCの構造と動作原理 5	6
		6.1.2	LAr 検出器で用いる MPPC への要請	8
		6.1.3	TSV-MPPC	9
	6.2	1 ch TS	SV-MPPC を用いた LAr 光の読み出し試験 6	0
		6.2.1	測定セットアップ6	0
		6.2.2	LED 光を用いた Gain と N <sub>pix</sub> の算出	2
		6.2.3	<sup>241</sup> Am イベント	4
	6.3	MPPC	このチャンネル接続	5
		6.3.1	MPPC のチャンネル接続方法 6	5
		6.3.2	MPPC 読み出し基板の設計・製作 6	7
	6.4	LAr 検	出器への導入	1
		6.4.1	セットアップ	1
		6.4.2	<sup>241</sup> Am $\gamma$ 線イベント	4
		6.4.3	MPPC 出力波形の評価	5

		6.4.4	MPP	C Gai	n の	評価		•		•													•	77
		6.4.5	検出ナ	七量の	評価					•												 		78
	6.5	まとめ	と考察					•		•					•		•				•		•	79
7	=と	めと今	後の展	<u>亡月</u>																				81
'	а С	WC 7	及り成	Ŧ																				91
	7.1	各章の	まとめ					•		•										•			• •	81
	7.2	今後の	展望					•		•													• •	81
		7.2.1	高感度	£ LAr	検出	器を	用	い	た	暗景	県牧	勿質	探	索	実	験			•			 		81

# 図目次

1.1	3つの暗黒物質探索手法	2
1.2	$Y_{\chi}$ の振る舞い [1]	4
1.3	式 1.12 の概念図...............................	6
1.4	暗黒物質の反跳エネルギー........................	7
1.5	WIMP 直接探索実験の世界的現状 [7]	8
2.1	希ガスの蛍光波長と窓材の透過率 [22]	11
2.2	LAr レスポンスの概略図	12
2.3	光量のエネルギー依存性 (左:Xe[28],右:Ar[29])	13
2.4	LAr の核的消光因子 [25]	14
2.5	不純物混入による LAr 蛍光寿命の変化 (左:O <sub>2</sub> [31],右:N <sub>2</sub> [32])	14
2.6	ER 事象と NR 事象の LAr 蛍光波形の比較	15
2.7	<sup>252</sup> Cf 線源データの <i>L<sub>total</sub></i> -PSD 分布 [30]	16
2.8	toyMC による異なる光量の PSD 能力の比較	16
3.1	ANKOK 実験の物理目標	18
3.2	ANKOK 実験室の様子	19
3.3	ANKOK 実験配管図 [33]	20
3.4	200L 容器外のシールド (左:シールドなし,右:シールドあり)	21
3.5	2017 年からの ANKOK 検出器	21
3.6	早稲田地上の環境中性子測定結果 [45]	22
3.7	ANKOK 実験における <sup>39</sup> Ar の観測 [39]	23
3.8	1 相型 LAr 光検出器の概略図	24
3.9	透過率の入射角度依存性 (450 nm 光)[44]	25
3.10	LAr 検出器の光量向上のステップ	27
4.1	TPB 外観	29
4.2	TPB の蛍光スペクトラムと変換効率 [46]	30
4.3	TPBの蛍光スペクトラムの温度変化 [47]	30
4.4	TPB 発光の様子 (左:TPB なし、右:TPB あり)	31
4.5	<u>真空蒸着の概要</u>	31
4.6	真空蒸着法における薄膜の成長過程 (上:単層成長型,下:核成長型)	32
4.7	真空蒸着装置の外観	33
4.8	るつぼ (下段左:外観,下段右:Pt 抵抗温度計+グラファイトシート (GS))	33
4.9	蒸着中の各パラメーターの変化	34
4.10	TPB 蒸着表面の偏光顕微鏡による観察写真	35
4.11	QCM センサーの外観	36
4.12	QCM センサーの等価回路	37
4.13	QCM センサー出力波形	38
4.14	砂糖水溶液滴下の様子	38
4.15	OCM センサーのキャリブレーション結果 (左・亜現性 良 右・亜現性 悪)	30
4 16	OCMの設置位置	30
<u>4</u> 17	30M 200 200 200 200 200 200 200 200 200 2	<u>7</u> 9
-1.11	9~19[1110~河口王//四川//・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	чU

4.18	TPB 烝看の一禄性	41
4.19	Dektac の外観と測定の様子       ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	41
4.20	腺厚測定結果 (上:補止前, ト:補止後)	42
4.21	アルコンの 軍光スペクトラム (黒:LAr, 赤:GAr)[23]	43
4.22	波長変換効率測定のセットアップ概略図	44
4.23	<sup>241</sup> Am イベントの GAr 蛍光波形	44
4.24	TPB 蒸着をしていないアクリル円板の蛍光量 (黒:GAr なし、赤:GAr あり)	44
4.25	TPB 蒸着したアクリル円板の光量	44
4.26	GAr 光量の時間変化 (2つの別のサンフル)	45
4.27	<ul> <li>可視光透過率測定のセットアップ</li> <li>・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ul>	45
4.28	遮光シートを用いたセットアップのテスト	45
4.29	TPB 蒸着アクリル円板	46
4.30	TPB 薄膜の波長変換効率/可視光透過率の測定結果	46
4.31	式 4.4 の計算結果 (緑プロット)	48
5.1	1 相型 LAr 光検出器	49
5.2	蒸着 PMT 窓面 (左:蛍光灯下,右:ブラックライト下)	50
5.3	veto 検出器	50
5.4	PMT の Gain キャリブレーションセットアップ	51
5.5	LED イベントの平均波形	51
5.6	LED イベントの PMT 出力電荷分布とフィットの様子 (1570 V)	52
5.7	印加電圧と Gain の関係	52
5.8	検出光量測定セットアップ.........................	53
5.9	線源データのスペクトル	53
5.10	1 相型 PMT 検出器の光量測定結果	54
5.11	PMT ダイノード 1 段目増幅の概念図 [56]	55
6.1	MPPC の photon counting 概念図	56
6.2	MPPC の典型波形	56
6.3	MPPC 等価回路	57
6.4	PMT と MPPC のサイズ比較	58
6.5	TSV MPPC 外観 (左:1ch タイプ, 右:Array タイプ)	59
6.6	TSV MPPC のスペック値 (浜松ホトニクス測定 [59])	60
6.7	測定セットアップ	61
6.8	<sup>241</sup> Am イベントの平均波形 (TSV)	62
6.9	LED イベントの波形 (TSV)	62
6.10	LED データの典型的な電荷分布	62
6.11	Gain 測定結果	64
6.12	N <sub>pix</sub> 測定結果	64
6.13	 典型的な <sup>241</sup> Am データの出力電荷分布 (印加電圧 45 V)	64
6.14	MPPCの直列接続回路	65
6.15	MPPC の並列接続	66
6.16	MPPC のハイブリット接続 [62][63]	66

~		~-
6.17	lch とチャンネル接続した MPPC 半均波形の比較	67
6.18	TSV-MPPC Array の読み出し基板	68
6.19	MPPC 接続回路	69
6.20	FFC-1.28 mm ピッチ変換基板	69
6.21	極低温での全チャンネル動作確認	70
6.22	ハイブリット回路基板を用いた MPPC 出力波形 ...........	70
6.23	蒸着後の MPPC 受光面 (左:蛍光灯下,右:ブラックライト下)	71
6.24	HV 線の分岐部分	72
6.25	1 相型 TSV-MPPC Array LAr 光検出器	72
6.26	1 相型 TSV-MPPC Array LAr 検出器と veto 検出器	73
6.27	LAr 光イベント波形	74
6.28	<sup>241</sup> Am イベントの分布	75
6.29	MPPC の出力波形	76
6.30	ボード内で sum した MPPC 出力波形 (左:75U,右:50U,赤線は式 6.5 での	
	フィット結果)	77
6.31	ボード内で sum した LAr 蛍光波形 (左:75U,右:50U,赤線は式 6.6 での	
	フィット結果)	78
6.32	小光量レーザー MPPC 出力分布 (V <sub>ov</sub> ~6 V)	78
6.33	$Gain \times N_{pix}$ 測定結果 ( $V_{ov} \sim 6$ V)	79
7.1	PSD 分布の再現	82
7.2	<sup>39</sup> Ar イベント数	82
7.3	WIMP イベント数の期待値	82
7.4	期待される到達感度	83

# 表目次

2.1	Ar の基本的性質 [21]	10
2.2	PMT と MPPC の光検出効率の比較	11
3.1	LAr 検出器の光量	27
4.1	TPB の基本物性	29
4.2	QCM センサーの情報 [50]	37
5.1	光量測定に用いた線源一覧.............................	53
6.1	使用したサンプル.................................	60
6.2	Gain 測定値とスペックシートの比較 $(V_{ov} = 3 \text{ V})$	63
6.3	各接続手法の利点および欠点............................	67
6.4	MPPC 検出器の収集光量測定結果	79

### 1 暗黒物質

本章では、本実験グループ (ANKOK 実験) が行っている WIMP 直接探索を中心に、暗 黒物質とその探索について概要を述べる。ただし、第 1.3.1 項は参考文献 [1] を、第 1.4.1 項は参考文献 [2] を参考にした。

### 1.1 暗黒物質の存在

暗黒物質は銀河団中の銀河の運動を説明するために、「光学的には見えない重力源」とし て 1933 年に F.Zwicky により提唱された [3]。その後,銀河の回転曲線 [4] や,重力レンズ 効果 [5] などの宇宙観測による間接的な存在証拠が多く示されている。また、宇宙全体の エネルギー密度のうち暗黒物質が占める割合は宇宙背景放射の観測から予測されており, 2018 年の Plank 衛星の結果では  $\Omega_c h^2 \sim 0.12(\sim 23\%)$  という結果が得られている [6]。加 えて,銀河を形成する上で暗黒物質が必須であったことなども示唆されている。このよう に,銀河や CMB の観測からその存在は強く支持されているが直接検出は未達成であるた め、暗黒物質が何種類あるかや、その性質などは分かっていない。暗黒物質は、宇宙の大 規模構造形成への関与や、素粒子標準模型に含まれない新しい素粒子であることなどが示 唆されており、その発見は現代物理学の最重要課題の一つである。

宇宙に存在すると考えている暗黒物質の候補は複数種類ある。例えば、「電磁相互作用 をしない」、「重力相互作用をする (= 質量がある)」、「寿命が宇宙年齢以上」の3つの条件 を満たす素粒子は宇宙暗黒物質の候補である。標準模型内の素粒子の中ではニュートリノ がこの条件を満たすが、質量が軽いためにニュートリノだけでは暗黒物質の質量を説明で きない。また、その軽さのために光速に近い速度で運動しており、重力相互作用によって 集合できないため、宇宙大規模構造の形成を説明することができない。そのため、ニュー トリノは宇宙暗黒物質の主成分ではないと考えている。このように相対論的に運動する暗 黒物質を hot dark matter と呼ぶ。一方で、非相対論的に運動する暗黒物質を cold dark matter と呼び、重力相互作用のみを考慮したシミュレーションにより現在の大規模構造を 良く説明できる。また、近年では銀河スケール以下の構造 (small scale problem) や、矮小 銀河中心付近の密度の不一致 (core cusp problem) を説明するために、cold と hot の中間 的に運動する warm dark matter も提唱されている。

#### 1.2 暗黒物質の探索手法

暗黒物質の候補は複数種類考えられており,対象となる領域に感度を持つ検出器を用い て多くのグループが探索実験を行っている。現在進められている探索のアプローチは大別 すると,加速器実験 (collider)・直接検出 (direct search)・間接検出 (indirect search)の3 つがある。

加速器実験は,LHCに代表される高エネルギー加速器で標準模型粒子同士を衝突させ, 生成粒子の中から暗黒物質を探す手法である。この手法では,質量の探索範囲は加速器の エネルギーで制限されるため,質量範囲を重くすることは困難だが,発見した場合には質 量や断面積,スピンなどの性質を精密に測定することができる。直接探索は,標準模型内 の物質と暗黒物質の相互作用(散乱)により生じる光や電離電子,熱などを観測する手法 である。地球周辺に存在する暗黒物質を,地表または地下に設置した検出器で検出する。 暗黒物質の質量が小さい場合には散乱エネルギーが小さくなり検出は困難になるが,質量 の上限値はないため加速器実験と直接探索は質量範囲に関して相補的な関係にある。間接 探索は,暗黒物質の崩壊や対消滅の結果生じる標準模型内の粒子 (γ, e<sup>+</sup>, p, D など)を 観測することによって探索する手法で,バルーン実験や衛星実験がこの探索手法に分類さ れる。

これら3つの探索手法は図1.1のように、同じファインマンダイアグラムを異なる方向 から見たことになる。現状はどの実験グループが最初に暗黒物質を発見するかを競ってい る段階だが、発見時にはこれら3つの手法で相互に検証することにより、暗黒物質の性質 解明や構成している種類が分かることが期待できる。



図 1.1:3つの暗黒物質探索手法

### 1.3 Weakly Interacting Massive Particle

本研究の ANKOK 実験は, WIMP(Weakly Interacting Massive Particle)の直接探索に よる発見を目標としている。WIMP は「電磁相互作用はしないが」,「弱い相互作用と同程 度のスケールで相互作用する」「質量 (GeV~TeV)を持った」粒子の総称である。

#### **1.3.1** 宇宙初期における WIMP の生成と残存量

WIMP は非常に高温であった初期宇宙に熱的に作られ、現在残っている量は対生成と 対消滅を繰り返したことにより決まったと考えている。生成と消滅を考えた場合、その残 存量は温度に依存し、温度が低くなるほど暗黒物質の数は少なくなり最終的には0になる はずだが、宇宙が膨張することにより暗黒物質同士の衝突確率が小さくなって対消滅が起 こらなくなる。そのため、宇宙がある温度まで冷えた段階で WIMP の量はほぼ変化しな くなる (freeze-out)。

以上に述べた WIMP の量の変化は式 1.1 のように Boltzmann 方程式で表せる。ただし,  $n_{\chi}$ :WIMP の数密度,  $n_{\chi,eq}$ :熱浴の熱平衡数密度, H(T):Hubble rate を表す。また,  $<\sigma v >$  は DM DM→SM SM の対消滅断面積を表し,温度に依存するパラメータである。それぞれ,右辺の第1項が WIMP の対消滅による減少,第2項が熱浴からの対生成による増加, 第3項が宇宙の膨張による密度の減少に対応する。

$$\frac{dn_{\chi}}{dt} = -\langle \sigma v \rangle (n_{\chi}^2 - n_{\chi,eq}^2) - 3H(T)n_{\chi}$$
(1.1)

また、各変数は以下のように表される。

$$n_{\chi}(T) = g_{\chi} \int \frac{d^{3}p}{(2\pi)^{3}} f_{\chi}(p,T)$$
(1.2)  

$$n_{\chi,eq}(T) = g_{\chi} \frac{m_{\chi}^{2}}{(2\pi)^{3}} f_{\chi}(p,T)$$
  

$$H(T) = \sqrt{\frac{8\pi}{3}} \frac{1}{M_{PL}} \sqrt{\rho_{r}(T)}$$
  

$$\rho_{r}(T) = \frac{\pi^{2}}{30} g_{eff}(T) T^{4}$$
  

$$g_{\chi} : DM \mathcal{O} \text{内部自由度}$$
  

$$f_{\chi} : DM \mathcal{O} \text{fr} \\ \\ m_{\chi} : DM \mathcal{O} \\ \\ f_{\chi} \\ \\ f_{\chi} \\ : DM \mathcal{O} \\ \\ f_{\chi} \\$$

ここで, 共動体積中の数密度 (comoving number density) を $Y_{\chi} = n_{\chi}/s$  ( $s = (2\pi/45)h_{eff}(T)T^3$ ) と定義すると, ある <  $\sigma v$  > に対して $Y_{\chi}$  は図 1.2 のように振る舞う。図から明らかなよう に, 温度が高い宇宙初期から数密度は下がり初め, 温度が低くなり (時間が経過し) ある温 度に達すると数密度が固定され, freeze-out していることが分かる。対消滅断面積が小さ い, つまり, より弱く相互作用をする場合には freeze-out 後に残る暗黒物質の量は多くな り, より強く相互作用する場合には少なくなる。

以上の変数の定義より、現存する暗黒物質の密度変数 ( $\Omega_{DM}$ ) は以下のように表すこと ができ、 $\Omega_{DM}h^2$  は式 1.4 となる。ただし、現在の温度を  $T_0$  としている。

$$\Omega_{DM} = \frac{\rho_{DM}}{\rho_{cr}(T_0)}$$
(1.3)  

$$\rho_{DM} = m_{\chi}s(T_0)Y(T_0) = m_{\chi}n_{\chi}(T_0)$$
  

$$\rho_{cr}(T_0) = \frac{3}{8\pi}H(T_0)^2M_{PL}^2 \sim 10^{-5} \,\text{GeV/cm}^3$$

$$\Omega_{DM}h^2 \sim 8.76 \times 10^{-11} \, GeV^{-2} [\int_{T0}^{T_f} g_*^{1/2} < \sigma v > \frac{dT}{m_{\chi}}]^{-1} \tag{1.4}$$

天文学的観測から得られている  $\Omega_{DM}h^2 \sim 0.12$ には,  $\langle \sigma v \rangle \sim 10^{-26} \text{ cm}^3/\text{s} \sim 10^{-9} \text{ GeV}^{-2}$ のとき一致する。ここで電弱相互作用と同様な相互作用と結合定数 g を仮定した場合,断面積  $\langle \sigma v \rangle \sim g^4/m_{\chi}^2 \sim 10^{-9} \text{ GeV}^{-2}$ より,質量は O(GeV - TeV)が期待される。この質量領域は電弱対称性が破れるエネルギースケールと一致していることから,WIMP が暗黒物質の最有力候補の1つであると考えている ("WIMP miracle")。



図 1.2: Y<sub>v</sub>の振る舞い [1]

### 1.4 WIMP 直接探索実験

暗黒物質の直接検出を目指す実験は世界各地で行われており、本実験グループANKOK は WIMP の直接検出を目指して液体アルゴン (以下,LAr)を標的物質に用いた検出器を 構築している。

WIMP は銀河を取り囲むように存在し,ある速度 v<sub>0</sub> を最頻値とするボルツマン分布に 従う速度分布を持つと考えている。また,速度の平均値は銀河に対して 0 だと仮定する。 地球が属する太陽系は銀河中を回転しているため,地球に置いた検出器は常に WIMP が 存在する空間中を運動していることになる。以上より,「銀河に対する地球の運動速度」+ 「ボルツマン分布の速度」で標的物質と WIMP が反跳すると仮定し探索を行う。

WIMP 直接探索の場合, 散乱する標準模型内の粒子にクォークを仮定し,「検出器内の 標的物質の原子核」と「宇宙から飛来する WIMP」の弾性散乱を信号事象として観測す る。原子核にエネルギーが落とされた後は,ただの運動する荷電粒子 (=反跳した標的核) の反応であり,検出器内で光や電荷などに変換される。この信号の1つ,または複数を検 出することにより反跳エネルギーを得たり,背景事象を分離を行う。WIMP-核子弾性散 乱はイベント数が少ない稀事象であるため,背景事象を除去することにより,極低バック グラウンド環境下で実験を行うことが鍵になる。

#### 1.4.1 WIMP-核子弾性散乱の計測率

WIMP と原子核の弾性散乱を仮定し探索を行う実験では、以下のようにして検出器に おける WIMP-核子弾性散乱のイベント数を予測している。ただし、以下では WIMP が 1 種類であると仮定して計算を進める。WIMP は質量 *m*<sub>x</sub>,地球近傍における数密度 *n*<sub>x</sub> と し、ボルツマン速度分布 f(v) で存在しているとする。

$$f(v) = \frac{1}{(\pi v_0^2)^{3/2}} exp(-\frac{|v - v_E|^2}{v_0^2})$$
(1.5)  
 $v_E$  : 天の川銀河から見た地球の速度 ~ 230 km/s  
 $v_0$  : 銀河の観測より ~ 220 km/s

次に,標的物質に原子番号が*Z*,質量数が*A*の原子核 N(Z,A)を選ぶ場合,単位体積・単位時間あたりのイベント数*R*は式 1.6 のように表せる。ただし,*R*は質量 *M*の有感領域を持つ検出器において,時間*T*の間観測した場合の信号事象数  $N_{sig}$ を用いて, $R = N_{sig}/(MT)$ とする。

$$R = \frac{N_0}{A} n_{\chi} \int_{E_R^{max}}^{E_R^{max}} dE_R \int_{v_{min}}^{v_{max}} dv f(\mathbf{v}) \frac{d\sigma_N}{dE_R}$$
(1.6)  

$$E_R^{max} : 反跳エネルギーの最大値$$
  

$$E_R^{min} : 検出できる反跳エネルギーの最小値$$
  

$$v_{max} : 銀河からの脱出速度$$
  

$$v_{min} : 反跳エネルギーが E_R になる最小速度$$
  

$$N_0 : アボガドロ数$$

また、 $v_{min}$ は以下のように書ける。ただし、 $m_N$ は標的原子核の質量。

$$v_{min} = \sqrt{\frac{m_N E_R}{2\mu^2}}$$

$$\mu = \frac{m_N m_{\chi}}{m_N + m_{\chi}}$$
(1.7)

WIMP と原子核の微分散乱断面積は、現象論より以下の式で表される。運動量移行 q が WIMP の波動性が無視できないほど大きい場合、原子核の内部構造が見えることにより 反応断面積が小さくなるため、形状因子 F(q) がかかっている。WIMP 直接探索実験では、 Helm Form Factor(式1.9) が一般に用いられる。ゼロ運動量移行断面積  $\sigma_N$  の第1項はス ピンに依存しない断面積、第2項はスピンに依存する断面積だが、本研究で標的核に核ス ピンのない<sup>40</sup>Ar を用いているため  $\sigma_N^{SD}$  は無視する。また、第1項の  $f_p \ge f_n$  はそれぞれ、 陽子または中性子と WIMP の有効結合定数を表す。

$$\frac{d\sigma_{N}(q)}{dq^{2}} = \hat{\sigma_{N}} \frac{F(q)^{2}}{4\mu^{2}v^{2}}$$

$$q = \sqrt{2m_{N}E_{R}}$$

$$\hat{\sigma_{N}} = \frac{4\mu^{2}}{\pi} [Zf_{p} + (A - Z)f_{n}]^{2} + \sigma_{N}^{SD}$$
(1.8)

$$F(q) = 3 \frac{\sin(qr_N) - qr_N \cos(qr_N)}{qr_N} e^{-(qs)^2}$$
(1.9)  

$$r_N^2 = c^2 + \frac{7}{3}\pi^2 a^2 - 5s^2$$
  

$$c : 1.23A^{1/3} - 0.60 \,\text{fm}$$
  

$$a : 0.52 \,\text{fm}$$
  

$$s : 0.90 \,\text{fm}$$

ここで,陽子と中性子の有効結合定数が等しいとき,陽子に対する散乱断面積を $\hat{\sigma_p}$ とすると, $\hat{\sigma_N}$ は以下のようになる。標的核として異なる原子核を用いる場合には,核子に対する散乱断面積 $\hat{\sigma_p}$ を比較する。

$$\hat{\sigma_N} = \left(\frac{m_p + m_\chi}{m_N + m_\chi}\right)^2 A^4 \hat{\sigma_p} \tag{1.10}$$

次に、WIMP と標的核の弾性散乱において散乱エネルギー  $E_R$  は、運動量保存より式 1.11 と計算される。ただし、 $E_i$ :WIMP の入射運動エネルギー、 $\theta$ :散乱角とする。

$$E_R = E_i r \frac{1 - \cos(\theta)}{2}$$

$$r \equiv \frac{4m_{\chi} m_N}{(m_{\chi} + m_N)^2}$$
(1.11)

重心系において等方散乱であることを仮定すると、イベント数は反跳エネルギーが $0 \leq E_R \leq E_i r$ の間で一様になり、以下の式が成り立つ。

$$\frac{dR}{dE_R} = \int_{E_i^{min}}^{E_i^{max}} \frac{1}{E_i r} dR(E_i) = \int_{\boldsymbol{v}} \frac{1}{E_i r} dR(\boldsymbol{v} - \boldsymbol{v_E})$$
(1.12)



図 1.3: 式 1.12 の概念図

式 1.6 より, dR は以下のように書ける。

$$dR = \frac{N_0}{A} n_{\chi} d^3 \boldsymbol{v} f(\boldsymbol{v} - \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{E}}) v \hat{\sigma}_N F(q)^2$$
(1.13)

そのため、WIMP-核子散乱レートは式 1.12 の積分に代入して、以下のように書ける。形 状因子や地球の速度などを考量して積分を行う必要があり解析的には解くことができない が、数値計算を行うことで積分ができる。図 1.4 に Ar を標的核に用いたときの WIMP-核子散乱のエネルギースペクトルを示す。ただし、WIMP-核子散乱断面積は 10<sup>-40</sup> cm<sup>2</sup>、 WIMP の質量は 10 GeV/c<sup>2</sup> と 100 GeV/c<sup>2</sup> で計算している。WIMP と Ar 原子核の反跳エ ネルギーは数 10 keV 程度で、イベント数は低エネルギーほど多い。特に質量が 10GeV/c<sup>2</sup> の低質量 WIMP の場合には、反跳エネルギーが 10 keV 以上でイベント数が急激に減少す るため、閾値が 20 keV 以上の検出器では感度が無い。

$$\frac{dR}{dE_R} = \frac{N_0}{A} n_{\chi} F(q)^2 \hat{\sigma_N} \int d^3 \boldsymbol{v} f(\boldsymbol{v} - \boldsymbol{v_E}) v \tag{1.14}$$

次に, 質量 M の有感領域を持つ検出器で,時間 T の間観測した場合の信号事象数 N<sub>sig</sub> は, 以上の計算より次のように書ける。検出器により決まるパラメーターは, M/A, T, E<sub>min</sub> である。式から明らかなように,標的物質の質量 (M/A) と観測時間 (T) が大きいほど検 出できるイベント数は多くなるため,検出器の大型化・長期間の運用が重要となる。また, 低質量の WIMP を探索する場合は,検出器のエネルギー閾値を下げ反跳エネルギーが小 さいイベントを検出できるほど有利である。

$$N_{sig} = MT \frac{N_0}{A} n_\chi \int_{E_R^{min}}^{E_R^{max}} F(q)^2 \hat{\sigma_N} \int d^3 \boldsymbol{v} f(\boldsymbol{v} - \boldsymbol{v_E}) v$$
(1.15)



図 1.4: 暗黒物質の反跳エネルギー

#### 1.4.2 WIMP 直接探索の世界的現状

WIMP 直接探索実験では、期待される信号事象と背景事象の数で感度が決まり、検出し たイベント数が背景事象で説明できるよりも有意に多ければ発見を主張し、背景事象で説 明できれば棄却することになる。例えば、背景事象を0イベントに抑えた極低バックグラ ウンド環境下で1イベントのWIMP 事象を捉えれば発見を主張する。WIMP like な事象 が観測された場合、異なる核種を用いた検出器や実験グループによる検証や、地球の公転 に伴う季節変動 (6月2日にピーク)を観測し、WIMP 事象との整合性を確認することに より暗黒物質を検出したとの結論になる。

WIMP 探索の世界的現状を, 横軸に WIMP 質量, 縦軸に WIMP-核子散乱断面積をとっ た図 1.5 に示す [7]-[20]。実線の曲線はその線より上側に WIMP が存在することを棄却す る実験結果, 色塗りの領域はその範囲内に WIMP が存在することを主張する実験結果を表 す。また, 図中下部の黄色の部分は「ニュートリノフロア」と呼ばれる領域で, 10 GeV/c<sup>2</sup> 以下では太陽ニュートリノが, 10 GeV/c<sup>2</sup> 以上では大気ニュートリノが標的核とコヒーレ ント散乱する事象が背景事象になると予想されている領域である。



図 1.5: WIMP 直接探索実験の世界的現状 [7]

現状,質量が~10 GeV/c<sup>2</sup> 以上の領域では液化した希ガス元素の Xe を標的にした気液 2 相型 Xe 光検出器を用いた XENON1T が最も強い制限をかけている。一方で,WIMP と 核子の反跳エネルギーが小さい数 GeV/c<sup>2</sup> の領域では,DarkSide-50(LAr,気液 2 相型) や CRESST(CaWO<sub>4</sub> シンチレータ),CDMSlite(Ge 半導体検出器)が制限をかけている。た だし,数 GeV/c<sup>2</sup> の領域における DarkSide-50 の結果は,0 背景事象環境下の実験ではな く,背景事象のスペクトルに WIMP から期待される超過がなかったことから制限をかけ ている (いわゆる S2-only 解析)[13]。

NaI シンチレータを標的に用いた DAMA/LIBRA 実験は, 質量が 10~100 GeV/c<sup>2</sup>, か

つ,散乱断面積が~10<sup>-40</sup> cm<sup>2</sup>の領域 (いわゆる DAMA 領域) に発見を主張している。た だし,10 GeV/c<sup>2</sup> 付近は散乱核子に Na を,100 GeV/c<sup>2</sup> 付近は I を仮定した際の結果で, 標的核子の質量の違いから領域が異なる。この結果は,20 年以上に渡る観測の信号数時間 変化が WIMP の季節変動の周期 (6 月 2 日にピーク) と一致していることから,発見を主 張している。DAMA 領域は発見が主張された後,様々な核種や方法を用いて検証が行わ れ,発見と棄却が混在する領域になっている。どちらかの結果が間違えていたり (背景事 象の理解が不十分,解析により WIMP 事象を見落としているなど),WIMP の特性によ り NaI 検出器では散乱確率が大きくなるなど様々な可能性が考えられる。そのため,他グ ループにより NaI を標的物質に用いた追実験や,他核種を用いた実験が行われている。

Ar に着目をすると、2つの実験グループ DarkSide-50 と DEAP3600 が探索実験を牽引 している。DAMA 領域に関しても DarkSide-50 の S2-Only 解析 [13] が棄却している。一 方で、背景事象が0イベントの環境下で1イベントの暗黒物質を検出する 0BG 探索では、 DarkSide-50、DEAP3600 ともに DAMA 領域全てを棄却できてはいない。DarkSide-50 の 検証を行い、かつ、発見が可能な 0BG 手法で暗黒物質探索をするという意味でも、DAMA 領域まで感度を伸ばすことは必要だと考えている。

また,まだ探索されていない領域に感度を伸ばし暗黒物質を探索することは非常におも しろく,将来的にはニュートリノフロアに到達する実験が計画されている [18]-[20]。図 1.5 中の点線は計画中の将来実験による予想到達感度を示す。SuperCDMS(灰色破線) は半導 体ボロメータ検出器 (Si and Ge)を用いる実験である。10 GeV/c<sup>2</sup> 以下のより低質量の領 域では,大型化は困難だが,低反跳事象を検出可能な半導体やボロメーターなどを使った高 感度な検出器による探索計画が進められている。GADMC(紫破線)はLAr,DARWIN(緑 破線)はLXeを標的核に用いる実験である。大型化が比較的容易な液体希ガス検出器を用 いて,標的物質の質量を大きくすることにより,10 GeV/c<sup>2</sup> 以上の低散乱断面積領域の探 索計画が進められている。

#### 液体 Ar 光検出器 $\mathbf{2}$

希ガス元素の Ar に放射線が入射しエネルギーを落とすと、シンチレーション光や電離 電子が放出される。DEAP 実験がシンチレーション光を, DarkSide 実験はシンチレーショ ン光と電離電子を使用して暗黒物質探索を行っている。また、暗黒物質探索実験以外では、 ニュートリノ実験の DUNE 実験が標的媒質に LAr を用いている。このように,LAr は標 的媒質として多くの実験で使われており,本研究グループでも LAr を暗黒物質探索の標 的媒質として使用している。本章では,LAr のシンチレーターとしての諸性質について述 べる。

#### Ar 諸性質とLAr 蛍光の検出 2.1

Arの基本的な性質を表 2.1 にまとめる。

衣 2.1: Ar の	垦平的性頁 [21]
原子番号	18
原子量	39.95
融点 (1 atm)	84.0 K
沸点 (1 atm)	$87.5 \mathrm{K}$
密度 (液体)	$1395.4 \text{ g/cm}^3$
W 値 (電離)	$23.0~{\rm eV}$
W 値 (蛍光)	$19.5~{\rm eV}$
蛍光波長	$128~\mathrm{nm}$

主 9 1. A. の甘木的桝匠 [91]

図 2.1 に示すように, LAr は 128 nm の真空紫外光で発光する (青実線)。数光子レベル の微弱光の検出に広く使われている PMT を用いる場合には,窓面の透過率によって短波 長側の感度が決まる。図 2.1 には PMT 窓材の透過率も一緒に示しており、MgF2 窓が LAr 光を透過できることが分かる。しかし,MgF2 窓の PMT は LAr の極低温環境下 (87 K) で実用する段階ではなく、開発と試験が進められている。このように、波長が短く、極低 温環境下で運用することから,PMT で直接検出することは難しい。そのため,LAr 光を 使用する実験では波長変換材で可視光に変換してから検出する方法を広く用いている。可 視光に波長変換した場合には, 合成石英 (図 2.1 中の青破線) の窓材は光を透過させること ができ、LAr環境下で駆動する石英窓 PMT は既に実用段階にある。

一方で,半導体検出器の Multi Pixel Photon Counter(HAMAMATSU,以下 MPPC) には真空紫外光に直接感度を持つタイプがあり、研究開発が進められている。直接検出す る場合には、波長変換する場合と比較して位置分解能が良いなどの利点がある。

表 2.2 に各デバイスのおおよその光検出効率を示す。光検出効率に注目をする場合, PMT と MPPC ともに可視光に対する感度の方が良く、波長変換をすることにより、LAr 光を 直接検出するより大きな光量が得られる。運用段階にある LAr 光検出器は PMT を光検出 デバイスとして使用しており、ANKOK 実験でも LAr 用に開発された可視光に感度を持 つ PMT(HAMAMATSU, R11065) を用いている。可視光に感度を持つ MPPC と PMT を比較すると, MPPC は PMT の 2 倍程度検出効率が高い。PMT を MPPC に置き換え ることにより, 原理的には検出器の収集光量は 2 倍程度向上する。



図 2.1: 希ガスの蛍光波長と窓材の透過率 [22]

	PMT	MPPC
Direct	検出器 : MgF <sub>2</sub> 窓PMT QE ~ 20% (@128 nm)	検出器:VUV-MPPC PDE ~ 10% (@128 nm)
TPBで波長変換 128nm TPB 420nm	検出器 : 石英窓PMT QE ~ 30% (@420 nm)	検出器 : 可視光-MPPC PDE > 60% (@420 nm)

表 2.2: PMT と MPPC の光検出効率の比較

### 2.2 LAr の発光過程

LAr の発光過程の概略を図 2.2 に示す。LAr に粒子が入射し Ar と反跳すると,反跳粒 子が周囲の原子と相互作用することで,エネルギーは電離電子の生成 ("Ionization"),Ar 原子核の励起 ("Excitation"),熱 ("Motion") に分配される。それぞれに分配される割合 は、反跳粒子やLAr 環境の電場によって異なる。また,最初に励起した"Excitation"成分 と,電離電子とAr イオンが再結合 ("Recombination")して励起した Ar になる成分が LAr 光として発光する ("Scintillation")。一方で,一部の電離電子は再結合せずに逃げること で発光には寄与しない ("Escape")。例えば,気液 2 相型の LAr 検出器や,ワイヤを用い た電気読み出しをする場合には,電場により移動した電子 ("e<sup>-</sup> drift")の成分も検出でき る。電場を印可する場合にはその強さに応じて再結合確率が低下する。また,dE/dx が大 きい,つまり,電離電子が密に生成されるほど再結合確率は高くなる。 現状, "Motion"に分配される成分を見る LAr 検出器はなく, "Scintillation"のみ, または"Scintillation" + "e<sup>-</sup> drift"成分の組み合わせを信号として検出している。LAr を用いる WIMP 直接探索実験では, DEAP 実験が液 1 相型の検出器を ("Scintillation"のみ), DarkSide 実験は電場を形成して気液 2 相型の検出器 ("Scintillation" + e<sup>-</sup> drift)を用いている。どちらの検出手法が優れているかは一概には言えないが, LAr 光の収集光量を向上させたい場合には, 電場があると再結合確率が低下することから明らかなように, 0 電場環境で実験を行った方が有利である。



図 2.2: LAr レスポンスの概略図

次に,LAr 光の発光過程について述べる。希ガス発光の主要な成分は励起状態にある二 量体 (Excimer) が脱励起する際に生じるものである。Ar の励起状態には一重項励起状態  $({}^{1}\Sigma_{u}^{+})$ と,三重項励起状態  $({}^{3}\Sigma_{u}^{+})$ が存在し,両者ともに波長が 128 nm の真空紫外光を放 出する。また,蛍光の時定数がそれぞれ異なり,LAr の場合には, ${}^{1}\Sigma_{u}^{+}$ :約 6 ns, ${}^{3}\Sigma_{u}^{+}$ :約 1.5  $\mu$ s である [26]。

$$Ar_2^*(^1\Sigma_u^+) \rightarrow 2Ar + h\nu(128\text{nm})$$

$$Ar_2^*(^3\Sigma_u^+) \rightarrow 2Ar + h\nu(128\text{nm})$$

$$(2.1)$$

Ar 二量体励起状態は,式 2.2-2.4 に示す過程で生成される。式 2.2 はエネルギーを与え られた Ar が直接励起して発光する場合で,基底状態にある原子のスピンが 0 であるため, 励起された電子とその電子が束縛されている原子核系のスピンは逆向きになる。そのため, この過程で励起する Ar 二量体の多くは一重項励起状態である。

$$Ar + E_{recoil} \rightarrow Ar^{*}$$

$$Ar^{*} + 2Ar \rightarrow Ar_{2}^{*}(^{1}\Sigma_{u}^{+}or^{3}\Sigma_{u}^{+}) + Ar$$

$$Ar_{2}^{*} \rightarrow 2Ar + h\nu(128nm)$$

$$(2.2)$$

式 2.3 は電離した電子が再結合をして発光する過程で,電子が一度電離しているので,Ar イオンと電子はスピンの向きが同じにもなりうる。そのため,一重項励起状態と三重項励 起状態のどちらも生成されうる。

$$Ar + E_{recoil} \rightarrow Ar^{+} + e^{-}$$

$$Ar^{+} + Ar \rightarrow Ar_{2}^{+}$$

$$Ar_{2}^{+} + e^{-} \rightarrow Ar^{**} + Ar$$

$$Ar^{**} \rightarrow Ar^{*} + E_{heat}$$

$$Ar^{*} + 2Ar \rightarrow Ar_{2}^{*}(^{1}\Sigma_{u}^{+}or^{3}\Sigma_{u}^{+}) + Ar$$

$$Ar_{2}^{*} \rightarrow 2Ar + h\nu(128nm)$$

$$(2.3)$$

また,式2.4のように,電離電子によって一重項状態が三重項状態に変化する反応も起きる [27]。

$$Ar_2^*(^1\Sigma_u^+) + e^- \rightarrow Ar_2^*(^3\Sigma_u^+) + e^-$$
 (2.4)

入射粒子によって電子が反跳された場合には,波長 128 nm の光子が 1keV あたりおよそ 40 個放出される [24]。一方で,Ar と同じ希ガス元素の Xe は反跳エネルギーが 20 keV 以 下で,単位エネルギー当たりの蛍光量が減少することが知られている。図 2.3 の左プロッ トはその測定結果を示しており,横軸に入射 γ 線のエネルギー,縦軸に検出光量をとって いる [28]。Ar は,40~500 keVee では Xe のような光量の低下は見られないが,それより 低いエネルギーでは測られていない (図 2.3 右図 [29])。ここで,keVee は ER 事象で換算 した際の反跳エネルギーである (ee="Electron Equivalent")。また,keVnr は NR 事象で 換算した際の反跳エネルギーを表す (nr="Nueclear Recoil")。Ar も同様にエネルギーと 蛍光量の関係が 40 keVee 以下で線形から外れる場合には,検出光子数からエネルギーへ の換算が正しく行えない。そのため,WIMP 探索をする上で,10 keVee 以下のキャリブ レーションは今後必須になる。



図 2.3: 光量のエネルギー依存性 (左:Xe[28], 右:Ar[29])

原子核が反跳された場合には,周囲の Ar に落とすエネルギーの密度が大きいため,電 子が反跳するよりも,励起した Ar 同士が密に分布する。式 2.5の反応により電離電子が 生成され発光をせずに脱励起が起こるため,励起 Ar 同士が近い原子核反跳事象では発光 量が減少し,およそ 1/4 になる (核的消光)。横軸に反跳エネルギー,縦軸に核的消光因子 をとった図 2.4 に示すように,核的消光は電場が 0~3 kV/cm の間で測定している [25]。



 $Ar^* + Ar^* \rightarrow Ar^+ + Ar + e^-$ 

図 2.4: LAr の核的消光因子 [25]

また、LAr 中に酸素や窒素が混入している場合、式 2.6 のように発光をせずに脱励起が 起こる。特に、発光時定数が長い三重項成分  ${}^{3}\Sigma_{u}^{+}$  はその影響を一重項成分  ${}^{1}\Sigma_{u}^{+}$  よりも強 く受ける。図 2.5 は不純物濃度を変えながら LAr 光の時定数を測定した結果で、左図は O<sub>2</sub>[31] を、右図は N<sub>2</sub>[32] を混入させている。横軸には不純物の濃度、縦軸に時定数をとっ ていて、不純物濃度が上がるに従って時定数が短くなっている。酸素は 0.02 ppm、窒素は 0.5 ppm 以上が不純物として混入すると、蛍光時定数の変化として観測されるため、LAr 純度を保つセットアップを構築し運用している。

$$Ar_2^* + O_2 \rightarrow 2Ar + O_2$$

$$Ar_2^* + N_2 \rightarrow 2Ar + N_2$$

$$(2.6)$$



図 2.5: 不純物混入による LAr 蛍光寿命の変化 (左:O<sub>2</sub>[31],右:N<sub>2</sub>[32])

(2.5)

#### 2.3 LAr 蛍光の波形弁別

LAr 蛍光は 2 つの励起二量体からのシンチレーション光で構成されることから,2 つの 時定数成分を持つ。以下,一重項状態からの発光を fast ( ${}^{1}\Sigma_{u}^{+}, \tau \sim 6$  ns),三重項状態から の発光を slow ( ${}^{1}\Sigma_{u}^{+}, \tau \sim 1.5 \mu$ s) と呼ぶ。

時定数の成分比は原子核反跳事象 (NR 事象) と電子反跳事象 (ER 事象) により異なる。 NR 事象では Ar 原子核, ER 事象では電子が反跳されるが, Ar 原子核の方が電子よりも 重く,同じエネルギーで反跳されても速度  $\beta$  が異なるため, Bethe-Bloch の式 (式 2.7) よ り NR 事象の方が dE/dx が大きい。このことから, NR 事象では ER 事象よりも slow 成 分の割合が低くなる。

$$\frac{dE}{dx} = 2\pi N_a r_e^2 m_e c^2 \rho \frac{Z}{A} \frac{z^2}{\beta^2} \left\{ \ln \left( \frac{2m_e \gamma^2 v^2 W_{max}}{I^2} \right) - 2\beta^2 \right\}$$

$$N_a : 7 \pi \pi \pi \nabla \nabla \nabla \nabla \nabla P$$

$$r_e : 古典電子半径$$

$$m_e : 電子の静止質量$$

$$\rho : 物質の密度$$

$$Z : 物質の原子番号$$

$$A : 物質の原子質量$$

$$\beta : 入射粒子の速度 (= v/c)$$

$$(2.7)$$

図 2.6 の LAr 蛍光波形を見ると, slow と fast の 2 つの時定数成分があり, NR 事象の方が ER 事象よりも slow 成分の比が小さいことが分かる。ER 事象と NR 事象で slow 成分と fast 成 分の比が異なるため, LAr 蛍光には入射粒子の波形弁別能力 (Pulse Shape Discrimination, PSD) があり, WIMP 探索実験における信号事象の NR 事象と背景事象の ER 事象を強く 分離できる。



図 2.6: ER 事象と NR 事象の LAr 蛍光波形の比較

PSD を LAr 蛍光の全光量  $L_{total}$  と t=120 ns 以降の光量  $L_{slow}$ (主に slow 成分に相当)を 用いて  $PSD = L_{slow}/L_{total}$  と定義すると,図 2.7 に示すように ER 事象と NR 事象が分 離する。図 2.7 は横軸に検出光子数,縦軸に PSD をとっており,PSD の平均値は反跳エ ネルギーが小さくなると ER 事象と NR 事象が徐々に近づくことが分かる。また,分散は 検出光子数が大きいほどポアソン統計にしたがって小さくなる。



図 2.7: <sup>252</sup>Cf 線源データの L<sub>total</sub>-PSD 分布 [30]

PSD 能力は, ER 事象と NR 事象の PSD 平均値の差と分散により決まり, PSD 平均値 は物理で決まる値だが,分散は検出光量をあげるなどして小さくすることができる。図 2.8 の右は toyMC で PSD 分布を再現したもので, ER 事象 (青系統色)と NR 事象 (赤系統色) について光量が異なる分布を重ね描いている。toyMC は図 2.8 の左に示すように,2 項分 布に従い fast と slow の比でふり,ある分散の Gaus 分布でなまして生成している。fast と slow の比, Gaus 分布の分散は,第4章で述べる検出器で取得したデータから求めた値を 用いている。



図 2.8: toyMC による異なる光量の PSD 能力の比較

図 2.8 の右の分布は、反跳エネルギーが 19~21 keVnr に対応するの時の PSD 分布で、 横軸に PSD 値、縦軸にイベント数をとっている。また光量は、現状の世界最大光量であ る DarkSide-10 の 9.1 p.e./keVee と、可視光 MPPC を実装したときに原理的に到達可能 な 25 p.e./keVee の 2 つの場合を仮定している。信号事象である NR 事象を 50%残すよう に PSD=0.4 以下を信号領域とすることを考える。検出光量が 9.1 p.e./keVee を仮定した 際の PSD 分布では、背景事象である ER 事象が信号領域に PSD=0.4 で  $10^{-2}$  で染み出し ており、十分に分離できないことが分かる。一方で、25 p.e./keVee を仮定した際の PSD 分布では  $10^{-6}$  で ER 事象が染み出していない。このように、検出器の光収集効率を改善 することで、PSD 能力が向上する。

# 3 ANKOK 実験

早稲田大学寄田研究室の ANKOK 実験グループは WIMP の発見を目指し,西早稲田 キャンパスの半地下に LAr を標的物質に用いた検出器と LAr 安定運用のためのテストス タンドを構築し実験を進めている。本章では,ANKOK 実験の物理目標やセットアップに ついて述べる。

#### 3.1 物理目標

ANKOK 実験は、質量が約 10 GeV/c<sup>2</sup>、標的核子との散乱断面積が約  $10^{-40}$  cm<sup>2</sup> 以下の WIMP(いわゆる DAMA 領域) を、LAr を用いて探索することを目標にしている。第 1 章 で見たように、この領域は発見と棄却が混在している領域である。発見を主張している実 験は標的物質に固体を使用し、強い制限をつけている XENON1T や LUX は液化希ガス を用いている。一方で、DAMA が使用している核種は Na(と I) で Xe と比較すると軽い。 Ar は Na と比較的近い軽い原子核であり、強い制限をつけている Xe と同様に希ガス元素 であるため、Ar を用いて DAMA 領域を検証することは、矛盾を説明する可能性があり意 味がある。LAr を標的に用いる実験では、DarkSide-50 が S2-Only 解析で DAMA 領域を 棄却しているが、背景事象が 0 の環境での探索は、LAr 実験を牽引している DarkSide 実 験、DEAP 実験ともに行えていない。

図 1.4 に示したように、10 GeV/c<sup>2</sup> の WIMP と Ar の反跳エネルギーは、100 GeV/c<sup>2</sup> の WIMP との反跳エネルギーより小さい。そのため ANKOK 実験は、探索感度を低質量 側に向上するために、低反跳エネルギーイベントの検出に主眼を置き研究開発を進めてき た。WIMP 事象は非常に稀な事象であるため、興味のある反跳エネルギー範囲に背景事 象が存在すると、エネルギー閾値を下げることができず実験感度が低下する。そのため、検出器の背景事象分離能力を最大化することにより低エネルギー閾値化することが、検出 器開発で主眼を置くポイントである。



図 3.1: ANKOK 実験の物理目標

#### 3.2 液体 Ar 実験セットアップ

西早稲田キャンパスのセットアップは,LAr,検出器とそれが収容される 200L 真空断 熱容器,配管系 (充填/循環ライン),液化器,エレキラック,モニター用デスクで構成し ている。図 3.2 に ANKOK 実験セットアップの全体写真を示す。



図 3.2: ANKOK 実験室の様子

#### 3.2.1 LAr 容器と充填・循環系

LArは200Lの真空断熱容器に保持し,実験を行う。窒素,酸素,水などの不純物がLAr 中に存在すると,Ar光や電離電子が減少するため不純物を除去する必要がある[31][32]。 そのため,LArの純度を保ち,LArを安定運用するための充填・循環系を構築している (図 3.3)。ANKOKでは不純物を含む商業用の一般的なLArを用いているため,充填をす る際はモレキュラーシーブと還元銅で構成した自作のフィルターを通し初期純度を改善 する。充填後はArをガス相から取り出し循環させ,水や酸素を取り除くための SAES 社 Microtorと窒素を取り除くための Pureron 社 GP-5 を通すことで純度を維持する。

フィルターを通したガス Ar(以下, GAr) は,冷凍機がある液化機を通過させることで液体に戻し 200L 容器に戻す。液化機には 75L の真空断熱容器を用いている。75L 容器の上部に He コンプレッサー冷凍機を設置し,その真下に LAr を貯める鍋を置いている。鍋の中にはコイル状に巻いた配管を通してあり,フィルターを通した後の GAr はこの配管を通る。ただし,液化機は 200L の系とは分離されているため,200L の LAr は外部や 75L と完全に独立している。この鍋の中に通した配管で GAr を冷却し,LAr に戻してから 200L に送る。また,フィルターを通した後の Ar を液化するため,200L 内部で直接液化するよりも純度が高くなる。

加えて,200L 容器と循環系は実験開始前に10日から2週間程度真空引きを行いアウト ガスを可能な限り減らしている。以上のシステムにより窒素,酸素,水などの不純物を取 り除き,1ヶ月程度に渡って十分なAr純度を維持できる[33]。



図 3.3: ANKOK 実験配管図 [33]

#### 3.2.2 環境モニター

200L 容器内には温度計 (Pt 抵抗) や,真空・圧力計,液面計などの安定性を確認するた めのセンサーを設置している。第 3.2.1 項で説明した循環系を流れる GAr 流量もモニター している。また,200L 外部では実験室の酸素濃度などを確認している。これらは,実験 を安全に遂行する上で最も重要であるためデータロガーで自動的に取得し,一定値を越え た場合にはアラームが鳴るようにしている。また,Run shift をくみ,24 時間体制で常に 2 人つくようにして,真空断熱容器の真空度やその排気ポンプの正常駆動,各種機器の電 圧などを確認している。

### 3.2.3 DAQ システム

検出器からの出力は, SIS 社の Flash ADC (以下 FADC), SIS3316 で取得している。 SIS3316 は 250 MHz sampling の FADC で 4 ns ごとにサンプリングができるため, 時定 数が 6 ns と 1.5  $\mu$ s の LAr 波形を取得するのに十分である。データは波形情報として PC に保存する。

#### **3.2.4** 環境 $\gamma$ 線遮蔽シールド

200L 容器は環境中から入射する  $\gamma$ 線を遮蔽するために,鉛ブロックとその内側に無酸素 銅板を,底面及び側面を覆うように組み合わせて配置している。無酸素銅板は,鉛ブロッ クに含まれる放射性同位体由来の  $\gamma$ 線を遮蔽するために使用している。ただし,鉛ブロッ クの厚さは底面:10 cm,側面:5 cm 分を,無酸素銅板は底面と側面ともに 2 cm の厚さを 配置している。図 3.4 に構築したシールドの外観を示す。



図 3.4: 200L 容器外のシールド (左:シールドなし、右:シールドあり)

### 3.2.5 LAr 光検出器

ANKOK 実験では、目的に合わせて検出器を柔軟に変更してきた。2017年以降の3年 間では、本論文で述べる検出器を含めて5つの検出器を構築し実験を行った。図3.5に示 すように、それぞれの検出器で目的が異なる。例えば、図 3.5 中の左側の検出器では LAr 領域に最大3 kV/cmの高電場を形成し、電場環境中での PSD 分離能力の評価や核的消光 の測定など、高電場中でのLAr 応答の理解を達成している。このように、ある目的に特化 した検出器を構築することで、それぞれの検出器で成果を得ている。本研究では、図3.5 中の中央(第5章)と一番右(第6章)の2つの検出器について記述する。



気液2相型 高電場(0~ 3kV/cm)

液1相型 大光量 (PMT 7本×2面)

気液2相型

大型化

2018-2019 2018-2019 (本研究) - ガス1相型 - ガス蛍光study

2020 (本研究) - 液1相型 - 大光量 w/ MPPC

図 3.5: 2017 年からの ANKOK 検出器

#### **3.3 ANKOK 実験の背景事象**

背景事象は、環境中にある放射線が検出器内に入射し反応する外部背景事象と、検出器の部材中に存在する放射性同位体からの内部背景事象に分けられる。WIMP 探索の場合、約 1~500 keV のエネルギーで反跳する粒子は全て背景事象となる。そのため、背景事象の理解と低減は感度を向上させる上で重要である。以下に、ANKOK 実験における背景事象をまとめる。

#### 3.3.1 外部背景事象

外部背景事象は、検出器を設置している周辺の構造物から放出され、有感領域に入射す るγ線や宇宙線、環境中性子で構成される。このような事象は、検出器の周囲に鉛や水な どでシールドを構築することにより低減できる。また、宇宙線はそれ自体が検出器に侵入 するだけではなく、検出器部材、周囲の地盤や建物と相互作用することにより2次的に背 景事象を生成する。神岡鉱山のような地下実験施設では地盤で遮蔽されるために宇宙線の 影響が少なくなり、外部背景事象を削減することができる。

#### ・環境中性子

中性子はWIMPと同じ原子核反跳をするため解析的には除けず,シールドを増強す ることにより低減する。また,active veto 検出器を設置することでも削減できる。 WIMPの散乱確率は非常に低いため,検出器中で2回散乱することはほぼない。そ のため,有感領域の周囲に veto 検出器を構築し,有感領域とのコインシデンスをと ることで,WIMPよりも散乱確率が大きい中性子を選択的に削減できる。ANKOK 実験の測定により,実験を行う早稲田地上では図 3.6 に示すスペクトルで中性子が 存在することが分かっている (詳細は [45] を参照)。約 100 events/day/kg/keVnrの 中性子が検出器に入射すると見積もっており,水シールドや veto 検出器などを用い て低減する予定である。



図 3.6: 早稲田地上の環境中性子測定結果 [45]

#### ・環境 $\gamma$ 線

実験環境中にはγ線を放出する核子が多数存在している。検出器に入射したγ線は コンプトン散乱をすることにより、連続的な反跳エネルギースペクトルになるため、 WIMP 探索の背景事象となる。γ線と LAr の反応は ER 事象であり、PSD によって WIMP 事象と分離できる。そのため、環境γ線はシールドの構築と解析的な分離の 2つの手法で低減できる。

#### 3.3.2 内部背景事象

内部背景事象は検出器部材に含まれる放射性同位体由来のγ線, β線, α線や, そのα 線と検出器部材との (α, n) 反応による中性子が挙げられる。内部背景事象はシールドで低 減できないため,部材選定により放射線源が少ない素材を用いるか,解析的に除去する。

## ・β線源 (<sup>39</sup>Ar)

Ar には  $\beta$  崩壊する放射性同位体 <sup>39</sup>Ar(Q 値:565 keV, 半減期:269 年) が存在し内部 背景事象となる [38]。大気から生成される Ar には <sup>39</sup>Ar が 1 Bq/kg 程度含まれてい るため,解析的に分離し除去するしかない。<sup>39</sup>Ar が放出するのは  $\beta$  線で,LAr との 反応は電子反跳事象と同様の反応であるため,波形弁別により WIMP 事象と分離す ることができる。図 3.7 は ANKOK 実験で取得した ER 背景事象のスペクトラムで, <sup>39</sup>Ar が見えている [39]。このように,既に ANKOK 実験では環境中から入射する  $\gamma$ 線はシールドにより削減しており,<sup>39</sup>Ar が主な ER 背景事象となっている。そのた め,内部背景事象である <sup>39</sup>Ar を PSD によりどれだけ除けるかが WIMP 探索の鍵に なる。



図 3.7: ANKOK 実験における<sup>39</sup>Ar の観測 [39]

### ・内部 $\alpha$ 線

検出器部材に含まれる U/Th 系列の核種が主に α 線を放出する。U と Th はともに 半減期が長く (約 140 億年,約 45 億年),一度検出器部材に混入すると実験期間内に 減衰することはない。U/Th 系列から放出される α 線のエネルギーは,WIMP 探索 で興味がある反跳エネルギーよりも大きく,全てのエネルギーをLAr に落とす場合 には問題にならない。一方で,検出器部材にエネルギーを落としてからLAr に入射 する場合には背景事象となる。ER 事象と比較して,α線の dE/dx は原子核に近い ため PSD により分離することは難しい。また,(α,n)反応により中性子を生成し, その中性子が WIMP と分離できない背景事象になる。そのため,U/Th が少ない部 材を選定し,その量を正確に見積もる必要がある。

#### 3.4 LAr 検出器の光収集効率

ANKOK 実験では検出器への入射粒子と Ar の散乱を LAr 光を見ることで検出してい る。第 2.1 節で述べたように,可視光に感度を持つタイプの光検出デバイスは光検出効率 が 30%以上あり,直接 LAr 光を検出できる PMT や MPPC と比較して感度が高い。その ため,検出光量に着目をする場合には,波長変換材を用いて VUV 光を可視光に変換して から検出した方が有利であり,LAr 光を利用する多くの実験では波長変換材を用いる手法 が採用されている [36]。同様に ANKOK 実験でも波長変換材の TPB を用いる方法で光検 出をしている [37]。TPB については,第4章で詳細を述べる。

図 3.8 に 1 相型 LAr 光検出器の概略図を示す。粒子が検出器に入射し Ar 原子核と散乱 すると, LAr は真空紫外の 128 nm で発光する。内壁全体には波長変換材の TPB を塗布 しており,ここに LAr 光が入射すると内壁部分で可視光 (420 nm) に変換される。その後, 受光面に塗布した TPB を透過する可視光を検出する。



図 3.8:1相型 LAr 光検出器の概略図

上記のプロセスと,LAr の発光量や波長変換効率などを考慮して,検出器の収集光量 LY を以下のように定義する。式 3.1 の N<sub>LAr</sub> は物理で決まっている値であるが,それ以 降のパラメーターについては検出器の改善により向上することができる。

$$LY = N_{LAr} \times A_{VUV} \epsilon_{TPB} \times A_{VL} \epsilon_{QE}$$

$$N_{LAr} : LAr 発光量 (\simeq 40 \text{ photon/keVee})$$

$$A_{**} : アクセプタンス$$

$$\epsilon_{TPB} : TPB の波長変換効率$$

$$\epsilon_{QE} : 光検出デバイスの検出効率$$

$$(3.1)$$

 $A_{VUV}$ はLAr 光が TPB まで届く確率であり、検出器内壁全体を TPB で覆い、内部の 構造体を少なくする方が高くなる。また、LAr の 128 nm 光に対する自己減衰長は混在す る不純物によって決まり、不純物が多いほど短くなる。既にいくつかの実験によって測定 が行われており、およそ 66 cm[41]、50 cm[42]、>110 cm[43] という結果が得られている。 ANKOK 実験でも LAr 試験を行うのに十分に良い純度 (N<sub>2</sub> 不純物:100 ppb 以下)を得て いるため、自己減衰長は 50 cm より長いと考えられる。そのため、検出器のサイズが 50 cm を越えるほど大きくなると自己減衰が効いてくるが、数 10 cm 程度では大きな光量の 減少はない。

 $A_{VL}$  は波長変換後の可視光が光検出デバイスの窓面に届く確率である。可視光を効率よ く収集するために,検出器側面には反射フィルムの Enhanced Specular Reflector( $3M^{TM}$ , 以下 ESR)を設置している。ESR は多層膜のポリエステル系樹脂でできている鏡面反射材 で,LAr の極低温環境下でも使用が可能である。ANKOK では厚さが  $80\mu$ m のものを使 用しており,この ESR は波長が 410~800 nm の範囲でおよそ 98%以上の反射率を持つ。 ただし,図 3.9 は 450 nm レーザーを用いて測定した,ESR の入射角度と透過率の関係性 [44] で,反射率には角度依存があることが分かっている。



図 3.9: 透過率の入射角度依存性 (450 nm 光)[44]

一方で,光検出デバイスの受光面にも TPB を塗布しているが,塗布量が多すぎる場合 には可視光が透過せずに検出することができない。透過率の面から見ると塗布量は少ない 方が良いが,波長変換を考慮すると,"波長変換効率"と"可視光透過率"の関数である全光 収量を最大化することにより収集光量が向上する。

 $\epsilon_{TPB}$ は TPB の波長変換効率であり、TPB を塗布する量が少なすぎると十分に波長変換することができず光量が低下する。LAr 検出器には DEAP 実験のような液 1 相型と、 DarkSide 実験のような気液 2 相型の 2 種類があるが、波長変換材は両タイプともに検出器の内壁全体に塗布されており、その波長変換効率が検出光量に影響する。

*ϵ<sub>OE</sub>*は光検出デバイスの検出効率で,高いほど収集光量は大きい。

#### **3.5** 本研究の主題

#### 3.5.1 LAr 検出器大光量化の意義

ここまで,WIMP 探索の現状とシンチレーターとしての LAr 諸性質について概観し, ANKOK 実験の現状について記述した。ANKOK グループは検出器を低エネルギー閾値化 することにより低質量 WIMP(~10 GeV/c<sup>2</sup>)の探索を目指している。この領域の WIMP を探索するには,反跳エネルギーが 10 keV 程度のイベントを検出することが必要である が,現状では以下の2つが検出器を低エネルギー閾値化する上で課題となっている。下記 で見るように,2つの課題は検出器の光収集効率を改善することにより解決でき,結果的 に WIMP 探索感度の向上につながる。

#### (1) 「背景事象分離能力の不足」

通常の Ar に含まれる<sup>39</sup>Ar は検出器のエネルギー閾値を上げる主要な ER 内部背景 事象となるため,PSD による十分な除去能力を確保する必要がある。PSD 能力は検 出光量に依存し,反跳エネルギーが低いほど分離能力が低下するため,10 keVnr 程 度で十分な ER 背景事象の低減ができていない。PSD 能力は第 2.3 節で述べたよう に,検出器の光収集効率を向上することで ER 事象をより強く分離できる。

(2) 「LAr 発光特性の不理解」

LAr 蛍光特性は,低反跳エネルギー領域では十分に理解されていない。例えば,ER 事象のエネルギーと蛍光量の関係は 40 keVee(~160 keVnr)以下では測定されてい ない。低反跳エネルギー領域で理解が進まないのは,検出光量が少ないために γ 線 の全吸収ピークが見えないことが原因である。そのため,検出光量を向上すること により,この領域のキャリブレーションを行える可能性がある。

#### **3.5.2** 本研究の内容

本研究ではWIMP 直接探索の感度を向上させるために、収集光量向上による検出器のエネルギー低閾値化に主眼をおいた。現状,DarkSide などLAr を用いているグループは、表 3.1 に示すように検出光量が 10 p.e./keVee 以下のLAr 検出器を用いて実験を行っている。
风 0.1. 1111 八田 山 271 王		
実験	光量 (p.e./keVee)	
DarkSide	9.1	
DEAP	7.8	
ARIS	6.4	
SCENE	6.3	

表 3.1: LAr 検出器の光量

ANKOK 実験ではこれまでの研究で、検出器への反射材の導入や、波長変換材 TPB の真 空蒸着手法による塗布、LAr 純度の改善などを行うことにより 9.7 p.e./keVee という光量 が得られている。一方で、質量が 10 GeV/c<sup>2</sup> の WIMP を探索する場合には、10 p.e./keVee 以下の光量では不十分である。そこで、以下の 2 つを遂行することにより LAr 検出器の光 量を大幅に向上させた。本論文では、その 2 点について報告する。



図 3.10: LAr 検出器の光量向上のステップ

### 1. TPB 真空蒸着の最適化

ANKOK 実験で用いている PMT(R11065)の検出効率はおよそ 30%程度のため,LAr の発光量 40 photon/keVee を考慮すると,原理的には 12 p.e./keVee が達成できる。 光検出デバイスの検出効率以外では,式 3.1 よりアクセプタンスと波長変換効率を改 善すれば良い。そこで,塗布環境や塗布量を制御できる真空蒸着装置を製作し,TPB 塗布の最適化を行うことにより,式 3.1 の  $\epsilon_{TPB} \times A_{VL}$ の改善をした。

第4章では TPB 蒸着技術の最適化について記述する。塗布量の定量化と,波長変換 効率および可視光透過率と塗布量の関係性を述べる。第4章で決めた TPB 量を塗布 した小型の LAr 光検出器を用いて,LAr 中での検出光量を測定した結果について第 5章で報告する。

# 2. TSV-MPPC Array の実装

波長変換後の可視光を検出する場合, PMT よりも浜松ホトニクスの MPPC の方が 感度が高い。感度が2倍になれば式 3.1 の *ε*<sub>QE</sub> が大きくなり,検出光量も単純に2倍 になる。そこで,可視光に 60%以上の検出効率を持つ MPPC(TSV-MPPC Array) を実装した。MPPC への印可電圧値次第であるが,最大で PDE=65%が得られるた め,原理的には 40 photon/keVee × 65% = 26 p.e./keVee の光量が期待できる。

第6章では半導体光検出器のTSV-MPPC Array 導入のための R&D について記述 する。本研究で用いる光検出デバイスは、「波長変換後の1光子を高い効率で検出で き」「LAr 極低温環境下で駆動する」ことが必須である。そこで、可視光に対する感 度が高い浜松ホトニクス社の TSV-MPPC を LAr 環境下での使用に耐えられるかテ ストした。また、MPPC は受光面積が小さいため、十分な有感領域を確保するため に多チャンネル読み出しの R&D を進めた。TSV-MPPC Array を用いて行った LAr 試験についても報告する。

# 4 TPB 蒸着技術の最適化

ANKOK 実験では検出器内壁全体に波長変換材を真空蒸着法により塗布している。本章 では,TPB 真空蒸着装置の構築と,TPB 蒸着量の最適化について記述する。波長変換に よる LAr 光の検出では,128 nm 光の波長変換効率と,光検出デバイス窓面での可視光透 過率を同時に最大化する必要がある。そこで,製作した真空蒸着装置を用いて,塗布量と 波長変換効率・可視光透過率の関係性を測定した。その測定に基づき,検出器へのTPB 蒸着量を決定した。

# 4.1 波長変換材と真空蒸着法

# 4.1.1 波長変換材-TPB

LAr 光は波長が 128 nm と短くその直接検出は困難なため,波長変換材を用いて可視 光に変換してから検出する。LAr を用いる多くの実験では,波長変換材として 1,1,4,4tetraphenyl-1,3-butadiene(TPB)を用いている。TPB は白色粉状の物質 (図 4.1)で,表 4.1 の性質を持つ。TPB の融点は大気圧において約 210 °C,沸点が約 556 °C だが,加熱 しすぎると黄色の波長変換しない物質に変性するため注意を要する [49]。また,酸素環境 下で紫外線が当たると発光しないベンゾフェノンという物質に変化する。保管温度は 2~8 °C であるため,鍵付きの冷蔵庫に保存している。

分子式	$C_{28}H_{22}$
分子量	358.48
密度	$1.079 \mathrm{~g/cm^3}$
沸点 (1atm)	$556.1^{\circ}\mathrm{C}$
融点 (1atm)	$207 \sim 209^{\circ}\mathrm{C}$
発火点	$289^{\circ}\mathrm{C}$
保管温度	$2 \sim 8^{\circ} C$
屈折率	1.635



図 4.1: TPB 外観

#### 表 4.1: TPB の基本物性

図 4.2 に TPB の発光スペクトルと波長変換効率を示す [46]。TPB は波長が 400 nm 以 下の光を吸収し,およそ 420 nm にピークを持つように発光する。TPB が吸収する波長 が 45~250 nm の範囲内で,波長変換後の発光スペクトルの形は変わらない。波長が 128 nm の LAr 光を TPB で可視光に変換することで,LAr 環境下で使用できる合成石英窓 PMT(R11065) で検出できる。波長変換効率については図 4.2 の右図のように見積もられ ている。この結果はレーザー光を用いて測定されており,図の横軸は波長変換前の波長, 縦軸は変換効率を表す。ただし,赤と黒は全く同じデータを用いており,解析の手法が異 なるために差が生じている。128 nm において約 0.7 または 1.3 という結果があり,その値 には不定性が残っている。



図 4.2: TPB の蛍光スペクトラムと変換効率 [46]

波長変換材の発光時定数が長い場合,LAr 光の PSD がなまされてしまい背景事象の分離能力が悪化する。だが,TPB の主要な発光時定数は1 ns 程度とLAr 蛍光の時定数 (6 ns, 1.5  $\mu$ s) と比較して十分短く,LAr 光の PSD に影響しない [48]。また,図 4.3 に示すように,LAr 温度 (87 K) の極低温環境では 400 nm 付近にも第 2 のピークが見えてくるが,420 nm 付近に主要なピークがあることは変化しない [47]。このように TPB の発光波長は極低温でも可視光 (青) 領域から外れないため,合成石英窓 PMT で検出する際には問題にならない。以上のような性質から,TPB はLAr の波長変換材として適している。



図 4.3: TPB の蛍光スペクトラムの温度変化 [47]

図 4.4 は,後述する真空蒸着法で TPB を塗布したアクリル板と,TPB なしのアクリル 板の写真である。写真左側が TPB なし,右側が TPB を蒸着したアクリル円板である。こ の 2 つのサンプルに暗室中でブラックライト (長波長の紫外線,一般的には約 315~400 nm 程度)を照射すると,TPB を塗布したアクリル板のみが青く蛍光していることが分かる。 真空紫外の LAr 光が入射した場合も同様に可視光に変換される。



図 4.4: TPB 発光の様子 (左:TPB なし,右:TPB あり)

# 4.1.2 真空蒸着法

TPB は真空蒸着法を用いて検出器に塗布をする。真空蒸着法は図 4.5 に示すように,真空にした容器内で蒸着物質を加熱/昇華させることで,一定距離離れた位置にある基板の表面に付着させる,薄膜形成手法の一種である。昇華の方法は抵抗加熱やレーザー,電子ビームを用いる方法など蒸着物質に合わせて様々である。真空にする理由は,昇華した物質が蒸着面に到達するまでに気体分子などと散乱させないためである。真空度が悪いと蒸着面に到達するまでに減速してしまうため,薄膜を形成できなかったり,薄膜の強度や膜質が低下する。そのため,一般的に 10<sup>-4</sup> ~ 10<sup>-3</sup> Pa の真空度を得られるように排気系を構成する。また,るつぼと蒸着面の距離が長いほど蒸着の一様性は良くなる。真空蒸着では蒸着物質を加熱するため,熱によって性質が変わらない物質のみ蒸着ができる。本研究で使用する TPB は,真空中において 180°C 付近で昇華が始まるが,温度がさらに高くなると蛍光しない物質に変わるため温度の調節に注意が必要である。



図 4.5: 真空蒸着の概要

真空蒸着の場合,薄膜の形成過程は単層成長型,複合型,核成長型の3種類に分けられる。単層成長型は入射した蒸着物質が基板原子と結合し,全面を覆いながら単原子層を形成して成長する。一方で,核成長型は次のような過程を経て成長する。まず,入射した原子が基板上で複数集まり,"クラスター"を形成する。次に,後から入射してくる原子がクラスター部分で止まり吸収されることで凝集し,"核"を形成する。さらに核が成長し結晶

構造を作り,隣接する核と結合することで連続膜になる。単層成長型と核成長型の初期に おける形成過程を図4.6に示す。複合型は数枚の単層が成長した後,核成長過程に移行す る。基板と蒸着物質が特定の組み合わせの場合のみ単層成長型または複合型の過程で成長 するため,一般には核成長型の過程で薄膜が形成される。



図 4.6: 真空蒸着法における薄膜の成長過程 (上:単層成長型,下:核成長型)

# 4.2 真空蒸着装置と蒸着プロセス

### 4.2.1 TPB 真空蒸着装置

安定した TPB の塗布を行うために,図4.7 に示す真空蒸着装置を自作した。真空蒸着装置は,真空容器,排気系,るつぼ,蒸着基板を保持する治具,DC 電圧源,各種モニター系で構成している。真空容器は直径が420 mm,高さが400 mmのステンレス容器を用いている。この容器にはビューポートを2つ付けており (ICF114, ICF70),容器外からライトで照らしながら蒸着の様子を見ることができる。蒸着をする際には,ビューポートの窓面が TPB で汚れないようにサランラップで保護し,蒸着プロセスごとに交換する。内部へは,丸パイプで組んだ足場に設置したレバーチェーンでトップフランジを持ち上げてアクセスする。スクロールポンプとステンレス容器に直付けしたターボポンプ (190L/s)を用いて真空引きをし,15時間程度の真空引きにより最大で5×10<sup>-4</sup> Pa の真空度を得られる。容器内圧はブルドン管とピラニ・コールドカソード真空計を用いて測定しており,真空計の測定値は PC に自動で保存する。真空容器の内部には L 字型の金属板で組んだ台を入れてあり,5 cm 間隔で高さを調節できる。



図 4.7: 真空蒸着装置の外観

るつぼの概略図と外観を図 4.8 に示す。TPB は直径 ~7 cm のステンレス皿に入れ,10 cm 角のプレート型ヒーターに DC 電圧を印加し加熱する。熱伝導と熱一様性を良くする ためにステンレス皿とヒーターの間にグラファイトシートを挟み,ネジで圧着している。また,ステンレス皿とヒーターの間には白金抵抗温度計を挟み,蒸着中は常に温度をモニ ターする。DC 電圧と白金抵抗温度計の電線は市販のピンフィードスルーで真空容器内に 導入している。



図 4.8: るつぼ (下段左:外観,下段右:Pt 抵抗温度計+グラファイトシート (GS))

蒸着作業中はヒーター電圧,るつぼ温度,容器内圧,蒸着量の4つのパラメータをモニ ターする。るつぼ温度は白金抵抗温度計を,容器内圧はピラニ・コールドカソード真空計 を用いて測定し,ヒーター電圧とともにデータロガーで自動的に記録する。また,蒸着量 は第4.4節で説明する QCM を用いて測定する。

### 4.2.2 蒸着プロセス

蒸着プロセスは以下のようにして進める。図 4.9 に蒸着開始から終了までの各パラメー タの変化を示す。ただし、横軸は電圧をかけ始めてからの経過時間を表す。15 時間程度 の真空引きを行った後に容器内圧が1×10<sup>-3</sup> Pa 程度に達したら、ヒーター電圧をオンに し TPB を加熱し始める。るつぼ温度は電圧印加により上昇し、約 180°C に達したときに TPB の昇華が始まる。容器内圧も TPB の昇華に伴い5×10<sup>-3</sup> Pa まで上昇しているが、 この時の TPB の平均自由行程は約1 m 程度あり容器の大きさより長いことから、十分な 真空度を得ていると考えられる。また、QCM を導入したことによって、リアルタイムで 蒸着を確認できる。TPB の昇華が始まった後は、温度が上昇し TPB が変性しないように ヒーター電圧を下げている。るつぼ内の TPB を昇華させきったことをビューポートから 確認し、ヒーターの電圧を切り蒸着プロセスを終了する。



図 4.9: 蒸着中の各パラメーターの変化

全ての TPB を蒸着させきるまでの時間は,るつぼ内に入れる TPB の量により変わるが 40 分以内には蒸発が終わる。るつぼ温度も 210 °C 以上に上昇することはなく,TPB が黄 色く変性することもない。このシステムでは TPB 蒸着量はるつぼに入れる量で決まるが, 500 mg 以上の TPB を蒸発させようとすると, TPB が突沸しるつぼ外に飛んでしまうた め蒸着できない。このように蒸着可能な量には上限がある。突沸を防ぐためには, るつぼ を揺らしながら加熱するなどの工夫が必要であり, 今後 500 mg 以上の TPB を蒸着する 場合には, 改善が必要である。

蒸着プロセスは電圧値のみによってコントロールすることができ,電圧の設定値を同じ にすることにより蒸着の再現性を確保する。そのため,蒸着を行う側に特殊な技術は不要 で,人依存のない蒸着が行える。また,蒸着量を QCM で毎回測定し,その再現性を保証 している。

### 4.3 TPB 表面状態

図 4.10 に偏光顕微鏡で観察した蒸着 TPB の表面状態を示す。偏光顕微鏡は,偏光板を 試料の上下に直行させて設置した顕微鏡で,試料に結晶構造があり偏光の向きを変える性 質があると,その部分が明るく見える。このように,偏光を見るタイプの顕微鏡であり, 結晶構造を観察する場合などに用いられる。3 枚の写真はそれぞれ蒸着量を変えたサンプ ルで,左から順に約 2,15,25 µg/cm<sup>2</sup> の TPB をアクリル円板 (厚さ 3 mm) に蒸着してあ る。ただし,蒸着量は後述する QCM センサーを用いて測定した。

蒸着量が少ない~2 $\mu$ g/cm<sup>2</sup>の時には、全体的に同程度の偏光度で、特に偏光の強い箇所が点在している。蒸着量が~15 $\mu$ g/cm<sup>2</sup>に増えると、偏光が大きく明るい箇所が大きくなり、結晶構造が出来始めていることが見て取れ、さらに蒸着量が~25 $\mu$ g/cm<sup>2</sup>まで増えると、さらに結晶構造が大きくなっている。偏光顕微鏡による観察結果と核成長型の薄膜形成過程を比較すると、~2 $\mu$ g/cm<sup>2</sup>の時に"核"が形成され、その後核が成長し連続膜を形成する過程と考えられる。



. 300 μm

図 4.10: TPB 蒸着表面の偏光顕微鏡による観察写真

# 4.4 QCM センサによる TPB 蒸着量の測定

形成した TPB 薄膜を評価する上でその蒸着量は重要な情報である。そこで本研究で は、数 ng~数 100  $\mu$ g 程度の微量な質量を測定できる水晶振動子マイクロバランス (quartz crystal microbalance,QCM)を用いて、蒸着した TPB の質量を測定した。本節では、QCM を用いた蒸着質量の測定について記述する。

# 4.4.1 水晶振動子マイクロバランス (QCM)

QCM センサは図 4.11 のように,薄く加工した水晶板を 2 枚の金属電極で挟んだ構造を しており,電極に交流電場を印可するとある共振周波数で発振する。電極面に物質が固着 すると,その質量に比例して周波数が減少するため周波数変化量を測定することで付着し た質量が分かる。ただし,例えば羽毛が電極面に乗っている状態など測定したい物質が電 極に固着しない場合には,通常の QCM では正しく質量を測定できない点に注意が必要で ある。本研究で行う真空蒸着では TPB が電極面に固着するため正しく測定できると考え られる。



図 4.11: QCM センサーの外観

水晶を切り出す方向を AT-カットとした場合,水晶板は面に対して水平方向にずり振動 する (厚みすべり振動)。その振動周波数は水晶の厚さで決まり (基本周波数),薄いほど 高い周波数で振動する。物質が固着した際の周波数変化量は Sauerbrey の式 4.1 で説明す ることができ,式 4.1 から明らかなように,周波数変化量と固着質量変化量は比例関係に ある。

$$\Delta F = -\frac{2F_0^2}{\sqrt{\rho\mu}} \frac{\Delta m}{A}$$
(4.1)  

$$\Delta F : 周波数変化量$$
  

$$F_0 : QCM センサの基本周波数$$
  

$$\rho : 水晶の密度$$
  

$$\mu : 水晶のせん断応力$$

△m : 固着した質量変化量

一方で,電気的には図 4.12 に示す等価回路で説明でき,水晶振動子を発振回路に接続す ると式 4.2 に従う周波数で発振する。電極面に物質が固着することは,式 4.2 中の *L*<sub>1</sub> の変 化に対応する。また,QCM の基本周波数は回路部分の浮遊容量も影響し,水晶振動子の 厚さと式 4.1 から予測される「周波数変化量と固着質量の関係」をそのまま使うことはで きないため,キャリブレーションを行う。

$$f_{0} = \frac{1}{2\pi\sqrt{L_{1} \times C_{1}}}$$

$$C_{0} : 電極容量 + 浮遊容量$$

$$C_{1} : 水晶の伸縮/可塑性$$

$$L_{1} : 振動部分の質量に相当$$
(4.2)

R<sub>1</sub> : 内部摩擦,音響損失など



図 4.12: QCM センサーの等価回路

# 4.4.2 QCM 測定セットアップ

本実験では,発振回路とセットになっている TAMADEVICE Co.,Ltd の QCM(QSET-5P-H) を QCM センサーとして使用した (図 4.11)。表 4.2 に QCM センサーの情報をまと める。

表 4.2: QCM センサーの情報 [50]

P T = = = = = = = = = = = = = = = = = =	14104[00	
メーカー	多摩デバイス	
型番	QSET-5P-H	
基本振動数	$5 \mathrm{~MHz}$	
電極サイズ	$\phi 5 \mathrm{~mm}$	
測定感度	$3.47 \ \mathrm{ng/Hz}$	
測定レンジ	300 ng $\sim$ 100 $\mu {\rm g}$	

発振回路には4つの端子が準備されており(それぞれ test point, GND, Vdd, E/D 端 子), Vdd と E/D 端子を+1.5 V, GND を-1.5 V にして使用した。また, test point には LEMO ケーブルを接続し, オシロスコープと周波数カウンタ(ELAN DIGITAL SYSTEMS LTD., USBcount50)で読み出している。用いた QCM セットは発振が起こると図 4.13 の ような矩形波が出力される, 波形をオシロスコープでモニターしながら周波数を測定する。 ただし,発振開始から最初の 10 分程度は周波数が増加するため,安定してからの周波数 を測定値として用いた。また、QCM センサは付着物質を取り除けば再利用でき、本研究 でもエタノールで拭き取ることで繰り返し使用した。



図 4.13: QCM センサー出力波形

# 4.4.3 QCM O+vJ $\overline{}$ V- $\overline{}$ $\overline{}$ $\overline{}$ V

式4.1 で見たように、付着量と周波数変化量は比例関係にある。QCM センサセットアップの物質付着に対する応答を、砂糖水溶液を用いて以下のようにキャリブレーションした。 まず、濃度が0.1%の砂糖水溶液を作り、注射器を用いて QCM の電極面に滴下する。その 後、水分が蒸発し QCM 電極上に残った砂糖結晶を固着した質量として、滴下前後の周波 数変化量を比較した。ただし、周波数は値が安定した後の1分間の平均値を用いる。1時 間放置した後の周波数と、防湿庫内で丸一日放置した後の周波数が変化しなかったことか ら、砂糖水溶液を摘下した後に少なくとも1時間の乾燥時間をとった。



図 4.14: 砂糖水溶液滴下の様子

測定は滴下と乾燥を復数回行い,最後にエタノールで清掃するまでを1回とし,それぞれの個体で3回ずつ繰り替えした。図4.15は滴下試験の結果で,それぞれ1つのQCMについて3回の測定をプロットしている。横軸は滴下した水溶液の質量から期待される砂糖の付着量,縦軸は周波数変化量を表している。5つのQCMセンサーをテストした結果,2

つは再現性が悪く (図 4.15 の右), 3 つは比較的再現性が良かった (図 4.15 の左)。そのため、実験では周波数に再現性がある 3 つの個体を測定に使用した。付着量 (dm) と周波数変 化量 (dF) は比例関係にあり、線形フィットをすることにより傾きを算出した。再現性が良い QCM の係数  $k(dF = k \times dm)$  はそれぞれ 696 Hz/µg, 712 Hz/µg, 783 Hz/µg だった。



図 4.15: QCM センサーのキャリブレーション結果 (左:再現性 良,右:再現性 悪)

# 4.4.4 るつぼ内の TPB 量と蒸着量の関係性

蒸着プロセスはるつぼ内の TPB がほぼ全てなくなるまで続けるため,蒸着量はるつぼ に入れる TPB の質量に依存する。そこで,蒸着面を高さ 30 cm の位置に設定し,TPB の 質量を変えながら蒸着量を QCM を用いて測定した。QCM は図 4.16 のように,るつぼ中 心の直上から水平方向に r=0,7,12 cm に計 3 つ設置した。



図 4.16: QCM の設置位置

図 4.17 に測定結果を示す。図 4.17 の横軸はるつぼ内に入れた TPB の質量,縦軸には QCM で測定した単位面積あたりの蒸着質量を表す。赤実線,黒破線,青破線はそれぞれ 測定値を線形フィットしたものである。ただし,200 mg以上の点を取得した際に,中心に アクリル円板を設置していたため,r=0の点が取得できていない。また,蒸着量は第4.4.3 項で算出した値を用いて,以下のように算出した。

$$m_{TPB} = \frac{dF}{k \times A} [\mu g/cm^{2}]$$
(4.3)  

$$dF : 周波数変化量$$
  

$$k : キャリブレーションファクター$$
  

$$A : QCM 電極面積 = 0.25 \times 0.25 \times \pi$$

真空度が十分に高く気体分子との衝突を無視できることを仮定すると,TPB を入れたる つぼから直線的に運動し蒸着面に到達することから,蒸着量はジオメトリーから推定でき る。赤破線は,TPB の蒸発源をるつぼ中心と仮定した場合に,ジオメトリーから期待さ れる r=0 での蒸着量を表す。測定の結果,r=0,7,12 cm のそれぞれでるつぼ内の TPB 量 と蒸着量の関係が線形であることを確認した。また,期待される蒸着量ともおおよそ一致 しており,数%の差は気体分子との散乱や,TPB をるつぼに広げて入れていることが影響 していると考えられる。



図 4.17: るつぼ内 TPB と蒸着量の関係

図4.18の横軸は図4.16の長さr,縦軸はr=0の点で規格化した QCM で測定した蒸着量 を表す。黒点線はジオメトリーから期待される蒸着量を表し、測定結果の一様性は点線よ り良く、図4.17の結果と同様に、TPB のるつぼ内での広がりなどが影響している可能性が 考えられる。また、この一様性は使用する TPB 量によらず常に同じであった。そのため、 実験に使用する基板に蒸着を行う際は、基板よりも外側に設置するモニター用の QCM を 用いることで基板への蒸着量が分かる。以上の測定結果より、本研究で製作した真空蒸着 装置において蒸着量をコントロール出来ることを保証できた。



図 4.18: TPB 蒸着の一様性

# 4.5 触針式膜厚計を用いた膜厚の測定

TPB 薄膜の厚さは触針式膜厚計 (ULVAC, Dektac 6M) を用いて測定した。Dektac はサ ンプルの表面を針でなぞり段差を測定するため,アクリルに蒸着した TPB を一部はがし, TPB がある部分とない部分を比較している。



図 4.19: Dektac の外観と測定の様子

図 4.20 に TPB の蒸着量が約 32  $\mu$ g/cm<sup>2</sup>(QCM 測定値) のサンプルの膜厚測定結果を示 す。上段は生データで、中央の山が TPB あり、サイドの膜厚が薄い部分は TPB を剥がし た部分に対応する。また、蒸着をする場合には熱により蒸着基板が歪むため補正を行う。 測定値は図 4.20 中の赤と緑のバンド内の平均値の差とした。図 4.20 の下段が補正をした 後の結果で、膜厚は約 1  $\mu$ m 程度だった。QCM で測定した 32  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> と、TPB の密度 (1.079 g/cm<sup>3</sup>) から見積もると膜厚は約 300 nm。Dektac の測定結果と比較して、TPB 薄 膜の充填率は約 30%と見積もっている。



図 4.20: 膜厚測定結果 (上:補正前,下:補正後)

# 4.6 蒸着量と波長変換効率/可視光透過率の関係評価

TPB 薄膜の LAr 光波長変換効率と可視光透過率の関数である全光収量を最大化することにより、検出器の光収集効率は向上する。そこで、波長変換効率および可視光透過率を TPB 蒸着量を変えながら測定した。本節では、測定セットアップと結果について述べる。

### 4.6.1 波長変換効率測定のセットアップ

異なる量のTPBを蒸着したアクリル円板 (直径7 cm,厚さ3 mm)を複数枚用意し,GAr 蛍光の波長変換効率がTPB 量に対してどのように変化するかを見た。図 4.21 に示したよ うに LAr と GAr の蛍光スペクトルは異なり,GAr 蛍光の方が UV 成分の比が多い。その ため,LAr 検出器の光収集効率を最大化するという意味では、本来は LAr を用いて波長変 換効率測定を行うべきである。しかし、LAr 試験を行うことは人手と時間が多く必要で、 複数の組み合わせを試験することは難しいために、比較的簡単に試験が行える GAr を用 いた。そのため、以下の試験は VUV と UV 成分の波長変換効率を見ていることに注意が 必要である。



図 4.21: アルゴンの蛍光スペクトラム (黒:LAr, 赤:GAr)[23]

図 4.22 に波長変換効率測定セットアップの概略図を示す。PMT (HAMAMATSU, R11065) の前に GAr を流入させる暗筒 (直径約7 cm, 高さ約8 cm)を固定し,暗筒の内部は反射光 を減らすために黒色にした。GAr はガスボンベから 10 L/min で流入させ,測定の期間中 は常に流しつづけた。また,GAr を励起させる  $\alpha$  線源として <sup>241</sup>Am を暗筒の側面に固定 し,<sup>241</sup>Am にはコリメータを付けて横方向に飛ぶようにしている。GAr 蛍光は PMT の前 に置いたアクリル円板表面の TPB で波長変換され,TPB 薄膜とアクリル円板を透過した 後に PMT で検出される。PMT は常に同じ電圧 (1500V) で動かし,出力値の相対値で評 価した。このセットアップで取得した <sup>241</sup>Am イベントの波形を図 4.23 に示す。

GAr 波形の 0 ~ 100 ns の積分値を fast 成分の光量と定義する。この時の光量分布を図 4.24 と図 4.25 に示す。図 4.24 は TPB を蒸着していないアクリル円板を用いた際の検出光 量分布で, GAr 流入前後で分布に変化はなく, GAr 蛍光を検出していないことが分かる。



図 4.22: 波長変換効率測定のセットアップ 概略図 図 4.23: <sup>241</sup>Am イベントの GAr 蛍光波形

ー方で, TPB 蒸着済みのアクリル円板を置いた図 4.25 ではピークが見えており,<sup>241</sup>Am イベントを検出できていることが分かる。このピークをガウシアンでフィットし,その平 均値を GAr 蛍光量とする。また,イベントレイトはおおよそ 0.1 Hz だった。

次に,GAr 流入開始からの光量の時間変化を図 4.26 に示す。横軸はデータのファイル 番号 (時間に相当),縦軸は各データファイルごとに求めた光量をとりプロットしている。 2つのプロットは,蒸着量が同じ異なるサンプルの測定結果である。GAr 流入直後はガス 純度が悪く蛍光しないが,時間が経過し純度が良くなるにつれて光量が大きくなり,30分 程度で飽和する。そのため,本測定では飽和後の測定値を使用した。また,蒸着量が同じ 異なるサンプルの測定値はフィット誤差の範囲内で一致している。



図 4.24: TPB 蒸着をしていないアクリル円 板の蛍光量 (黒:GAr なし,赤:GAr あり) 図 4.25: TPB 蒸着したアクリル円板の光量



図 4.26: GAr 光量の時間変化 (2 つの別のサンプル)

### 4.6.2 可視光透過率測定のセットアップ

青色 LED を光源として, TPB 蒸着をしたアクリル円板 (直径 7 cm, 厚さ 3 mm)の 透過率を測定した。図 4.27 に測定セットアップの概略図を示す。PMT(HAMAMATSU, R11065)の前に暗筒 (直径約 7 cm, 高さ約 8 cm)を固定し, PMT と反対側に LED を固定し た。暗筒の内部は反射光を検出しないように黒くしている。LED は, Function Generator と Pulse Generator で作った,幅が数 10 ns 程度の電圧パルスで発光させ,アクリル円板 を透過した後に PMT で検出する。また,波形は Function Generator をトリガーとしてオ シロスコープで取得し,平均波形のピーク値を測定値として用いた。ただし,LED 光が 徐々に大きくなるため,安定した後に測定を行った。TPB 蒸着したアクリル板と,蒸着 していないアクリル円板を交互に 3 回づつ測定し,その比を透過率とした。

このセットアップが光量に対して線形に応答するかを,透過率が15%程度の遮光シートを用いて確認した。図4.28にその結果を示す。横軸は遮光シートの枚数,縦軸は遮光シートを挟まない時のピーク値に対する比を表す。PMTの電圧が1000Vと1200Vの2点でデータを取得し,透過率が約16%という結果が得られた。そのため,このセットアップが透過率測定として妥当だと考える。



図 4.27: 可視光透過率測定のセットアップ のテスト

### 4.6.3 波長変換効率と可視光透過率の測定結果

上記のセットアップを用いて,蒸着量が異なるアクリル円板の波長変換効率および可視 光透過率を測定した。図 4.29 に測定したアクリル円板の写真を示す。蒸着量は左から順に 0.0, 2.2, 8.2, 15.0, 25.3, 32.4 µg/cm<sup>2</sup> である (QCM 測定)。蒸着量が増えるほど白くなり ブラックライト照射による蛍光も明るいように見える。



図 4.29: TPB 蒸着アクリル円板

横軸に QCM で測定した蒸着量,縦軸に GAr 検出光量 (青丸プロット) または可視光透 過率 (赤四角プロット) をとった図 4.30 に測定結果を示す。ただし,GAr 検出光量は蒸着 量が最も多い点で規格化している。今回の GAr テストは,波長変換効率の絶対値には言 及できないが,変換効率の相対値が TPB 蒸着量に依存してどのように変化するかが分か る。測定の結果,波長変換効率は TPB 蒸着量が増えるほど高くなり,25 μg/cm<sup>2</sup> 以上で 飽和する。一方で,可視光透過率は蒸着量が増えるほど減少した。



図 4.30: TPB 薄膜の波長変換効率/可視光透過率の測定結果

# 4.7 まとめと考察

# 4.7.1 本章のまとめ

本章では,真空蒸着技術の最適化について述べた。真空紫外光から可視光に波長変換で きる TPB は LAr の波長変換材に適する特徴を持つ。TPB は自作した真空蒸着装置で検 出器内壁全体に塗布しており,TPB 真空蒸着のプロセスをヒーター電圧のみで制御する ことにより蒸着の再現性を確保した。また,QCM で蒸着量を毎回測定することにより再 現性を保証している。

次に、検出光量に影響する TPB の波長変換効率と可視光透過率について、TPB 蒸着量 との関係を測定した。波長変換効率が蒸着量の増加に伴い増加し、25 µg/cm<sup>2</sup> で飽和する ことが分かった。また、可視光透過率については TPB 量が多いほど低下する。

### 4.7.2 TPB 蒸着量の決定

PMT 窓面の TPB を透過しない光が,反射材の ESR を検出器内壁に設置しているため 反対側の PMT で全ての光子が検出されると仮定した場合,TPB 蒸着量は多い方が良い。 そのため,蒸着量は,本研究で製作した真空蒸着装置で安定した蒸着が行える最大量が最 適値となる。

一方で、PMT 窓面の TPB を透過しない光のうち幾分かが検出できない場合には、透過 率を考慮する必要がある。例えば、検出されるまでの過程を簡単に次の3パターンだと考 える。「(1) PMT 窓面で波長変換し、その PMT で検出する」、「(2) PMT 窓面で波長変換 し、反対側の PMT で検出する」、「(3) 検出器側面の ESR で波長変換し、どちらかの PMT で検出する」。(1)+(2):(3) の比が PMT と ESR の面積比 (2:3)、(1):(2) の比が 1:1 と仮定 すると、検出光量は波長変換効率 C = 可視光透過率 T = 1 で規格化したときに以下の式 で書ける。

$$LY = \frac{C + CT + 3T}{5} \tag{4.4}$$

式 4.4 に測定結果を当てはめて計算すると,図 4.31 の緑プロットになる。この仮定に よる計算だと,10 µg/cm<sup>2</sup> 以上で差は見られない。今回は,ESR を配置することにより, PMT 窓面の TPB を透過しなかった光子を検出できない確率は充分低いと考え,波長変換 効率を最大化することに重点をおいて約 30 µg/cm<sup>2</sup> を蒸着することにした。

### 4.7.3 蒸着の一様性

蒸着の一様性についてだが,波長変換効率と可視光透過率を考慮して議論する必要がある。図4.18より,本研究で構築した真空蒸着装置では中心から12cm離れた蒸着面でも-10% 程度の蒸着量である。蒸着量の差が光学特性に与える影響を考えた場合,30±3 μg/cm<sup>2</sup> の範囲内では,図4.30より波長変換効率と可視光透過率の変化は数%以下である。そのた め,直径が24 cmの円板までなら十分な一様性で蒸着が可能であると考えている。



図 4.31: 式 4.4 の計算結果 (緑プロット)

# 4.7.4 今後の課題

今回の測定には GAr 蛍光を用いており, VUV と UV 成分の波長変換効率が合わさった ものを見ている点に注意が必要であるが,以上の測定をふまえ,検出器の形状や大きさを 実装した光学シミュレーションを用いれば,より最適な点を求めることが可能だと思われ る。しかし,本検出器の形状を決定していないことや,できるだけ早いタイムスケールで LAr 試験を行いたかったことから,光学シミュレーションは行わずに蒸着量を決定した。 最適な蒸着量を見つけるために,検出器構造なども実装した光学シミュレーションを構築 することは今後の課題である。

# 5 PMTを用いた大光量LAr検出器の構築

波長変換効率と可視光透過率の測定から,およそ 30±3 μg/cm<sup>2</sup> の TPB を蒸着するこ とを決定した。そこで、1 相型 LAr 検出器を構築し,波長変換材 TPB を用いた場合の最 大検出光量を確認する。本章では、本実験のセットアップについて説明し、PMT を用い た LAr 検出器の検出光量を報告する。

# 5.1 セットアップ

# 5.1.1 1相型 LAr 光検出器

波長変換材を用いた検出器の最大光量を確認するために,小型の1相型LAr光検出器を 構築した (図 5.1)。筐体はテフロン (PTFE) で作り,有感領域は直径 6.4 cm,高さ 5 cm の約 160 cm<sup>3</sup>(LAr:約 225 g)の円筒型にした。筐体は複数のパーツから組み立てることに より,高さ方向の長さを変更できる。また,LArを効率よく有感領域に入れるために液抜 き穴を空けている。検出器は SUS とアルミニウムの治具で,液抜き穴が上下面になるよ うに固定している。



図 5.1: 1 相型 LAr 光検出器

光検出デバイスには 2本の PMT(R11065, QE~30%)を用い,窓面には TPB を蒸着した。波長変換効率と可視光透過率の両立が必要な PMT 窓面への蒸着量は,図 4.30 の結果を参考にし,それぞれ 26.1  $\mu$ g/cm<sup>2</sup>, 31.2  $\mu$ g/cm<sup>2</sup>(QCM 測定量)の TPB を蒸着している。蒸着量が 2本の PMT で異なるのは,蒸着量が少ない方の PMT に TPB を蒸着する際に,るつぼ内に TPB が残ってしまったからである。ただし,図 4.30 の結果より,波長変換効率が既に飽和していることから,検出効率に大きく影響しないと考え,蒸着はやり直さなかった。図 5.2 に TPB を 31.2  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> 蒸着した PMT 窓面の写真を示す。また,検出器内壁は反射フィルム (ESR) で覆い,反射フィルムは透過率を気にしないため,PMT 窓面より多い 41.7  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> の TPB を蒸着した。

有感領域に電場がかかっている場合,電場によって電離電子が引っ張られ再結合する割 合が減少することにより検出光量が減少する。最大光量を達成するためには0電場環境下 で実験をすることが望ましいが,PMT はネガティブベースで駆動しているため PMT 筐



図 5.2: 蒸着 PMT 窓面 (左:蛍光灯下,右:ブラックライト下)

体が高電圧 (~1500V) になり,有感領域にも電場が生じてしまう。そのため,筐体に配置 した電極と検出器を固定している治具を,PMT と同じ電位にすることにより電場をキャ ンセルした。femtet による見積りでは,1 V/cm 以下になると期待している。また,デー タは FADC(SIS3316) でデジタイズし,波形として PC に保存する。

# 5.1.2 veto 検出器

光検出デバイスとして PMT (HAMAMATSU,R6041-506MPD)を使用し,窓面には TPB が蒸着してある。これを,PMT 窓面に合わせて穴を開けたステンレス板に乗せ,1 相型 LAr 光検出器の上側に設置した。veto 用の PMT はポジティブベースで駆動しており,筐 体部分は0 V であるため,1 相型 LAr 光検出器と異なり固定しているステンレス板は GND に落としている。そのため,LAr 検出器内部に電場勾配を発生させないように約 20 cm 離 している。



図 5.3: veto 検出器

#### 

PMTのGainキャリブレーションは図 5.4 に示したセットアップで行った。LED を LAr 容器外の室温環境で点滅させ、液抜き穴に通した光ファイバーで検出器内に導入する。光 ファイバーの先端は検出器中心付近の壁際になるようにした。LED は、ファンクション ジェネレータとパルスジェネレータで生成した幅が 10 ns 程度の電圧パルスで点滅させる。 また、LED 光量は PMT で検出する光子数の期待値が 0.1 光子程度になるように調整する。 トリガーはファンクションジェネレータの信号で発行し、FADC でデータを取得する。



図 5.4: PMT の Gain キャリブレーションセットアップ

上記のセットアップで得られたデータの平均波形を図 5.5 に示す。ペデスタルは t=[-2 µs, -0.6 µs] の平均値, PMT の出力電荷量は t=[+80 ns, +140 ns] の間の積分値とした。 PMT の出力以降で,わずかに電位が低下しているが, PMT に出力がないときも同様に 低下しており,ファンクションジェネレータの影響でペデスタルが揺らいでいるためであ る。積分値で比較をする場合,0光子のピークがその分ずれるため,以下の Gain 解析で はキャンセルできる。



図 5.5: LED イベントの平均波形

使用した2つのPMT それぞれの出力電荷量分布を図5.6に示す。この分布を0~数光子を 検出したイベントがある分散を持って重ね合わされていると仮定して,式5.1でフィットし Gain を算出した。ただし, P( $n; \mu$ ) はポアソン分布, Gaus( $x; mean; \sigma$ ) は平均値 = mean, 分散 =  $\sigma$ のガウス分布,  $Q_{ped} \ge \sigma_{ped}$  はベースラインの平均値と分散,  $\sigma_{SPP}$  は1光子出力 電荷量の分散を表す。それぞれのガウシアンの平均値の差を Gain としている。また,ガ ウシアンの分散はペデスタルと1光子の2乗和としている。フィット結果を見るとペデス タルが負の方向にずれており,平均波形で見えていたペデスタルの低下をキャンセルでき ていることが分かる。また,PMT 出力後の電位が上昇する場合には、ペデスタルが正の 方向にずれることも確認した。

$$f(x) = P(0; \mu) \times Gaus(x; Q_{ped}, \sigma_{ped})$$

$$+ P(1; \mu) \times Gaus(x; Q_{ped} + Gain, \sqrt{\sigma_{ped}^2 + \sigma_{spp}^2})$$

$$+ \sum_{n=2}^{3} P(n; \mu) \times Gaus(x; Q_{ped} + n \times Gain, \sqrt{\sigma_{ped}^2 + n \times \sigma_{spp}^2})$$
(5.1)



図 5.6: LED イベントの PMT 出力電荷分布とフィットの様子 (1570 V)

Gain キャリブレーションのデータは複数の電圧点 (1400~1750 V) で 12 時間ごとに繰 り返し取得した。横軸に電圧,縦軸に Gain のプロット (図 5.7) を  $f(x) = p0 \times (V - p1)^{p2}$ でフィットした結果を Gain として用いる。また,LAr データを取得する際には 1570 V を PMT に印加し運用した。



図 5.7:印加電圧と Gain の関係

# **5.3** 放射性 γ 線源による光検出効率の評価

構築した1相型 LAr 光検出器の光収集効率を放射性γ線源を用いて測定した。光量測 定に使用した線源を表 5.1 にまとめる [51]。これらの線源を Ar 容器外の常温環境に置き データ取得を行った。





図 5.8: 検出光量測定セットアップ

<sup>22</sup>Na の 511 keV  $\gamma$ 線は,検出器と反対方向に放出されるもう 1本の  $\gamma$ 線を NaI 検出器 でタグすることにより <sup>22</sup>Na (511 keV) イベントを選択している。また,<sup>252</sup>Cf は中性子線 源として使用し,<sup>19</sup>F と中性子の非弾性散乱 <sup>19</sup>F(n, n' $\gamma$ ) により放出される  $\gamma$ 線 (197 keV と 110 keV)[52] を光量測定に用いた。<sup>252</sup>Cf についても NaI 検出器で,同時に放出される  $\gamma$ 線をタグしている。各線源を使用した際のエネルギースペクトラムを図 5.9 に示す。横 軸は,LED キャリブレーションで算出した Gain を用いて検出光子数になおしている。図 中の黒プロットが <sup>137</sup>Cs,青プロットが <sup>22</sup>Na,緑プロットが <sup>252</sup>Cf +<sup>19</sup>F の測定結果を表 す。それぞれの線源で全吸収ピークとコンプトンエッジが確認できる。



図 5.9: 線源データのスペクトル

<sup>22</sup>Na と <sup>137</sup>Cs は「error function+error function+gaus」, <sup>252</sup>Cf +<sup>19</sup> F は「exp+gaus」 を用いて、それぞれ全吸収ピーク付近をフィットしている。そのガウシアンの平均値を入 射エネルギーで割った、単位エネルギーあたりの検出光子数を図 5.10 にまとめる。赤プ ロットが本研究の測定結果、黒点線が他実験の検出光量 ([53]-[55]) を表す。ただし、他実 験の測定結果はすべて 0 電場環境下での測定値である。本測定では、各線源とも検出光量 は 11~12 p.e./keVee の範囲に収まっており、DarkSide 実験や DEAP 実験などの他実験と 比較して大きい。検出光量はこれら 4 点の平均値 11.6 p.e./keVee を中心値、複数回取得 した <sup>137</sup>Cs からエラーを 0.4 p.e./keVee とする。TPB 波長変換技術の最適化により、従来 の最大値 (DarkSide-10, 9.14 p.e./keVee) を越えて世界最大光量を達成した。



図 5.10:1 相型 PMT 検出器の光量測定結果

# 5.4 まとめと考察

#### 5.4.1 本章のまとめ

第4章の測定を参考にして決めた蒸着量の TPB を塗布した小型の1相型検出器で, 11.6±0.4 p.e./keVeeの世界最大光量を達成した。QE が30%程度の PMT を用いている検 出器で,LAr 光の収集効率を100%と仮定した場合に得られる光量は,LAr の蛍光量が40 p.e./keVee 程度であることから,12 p.e./keVee である。TPB でLAr 光が波長変換する際 に放出される光子数が1から大きく外れないことを仮定すると,本研究で行った蒸着技術 の最適化により,光収集効率を PMT の QE によってのみ制限されるところまで改善する ことができたと考えている。

### 5.4.2 PMT Gain キャリブレーション手法

本論文では、PMT の Gain をポアソン分布 × ガウス分布の式 5.1 でフィットすることに より算出したが、指数関数で説明される成分も存在することが分かっている。この成分は、 ダイノードの 1 段目で増幅がうまく進まないことが一定確率で生じることによるものだと 考えられている [56]。1 段目で増幅が起こらないのは、光電面で生じた電子が 1 段目のダ イノードで増幅せずに反跳する場合と (図 5.11 中-2)、光電面を通過した光子がダイノード の 1 段目で光電子を発生させる場合 (図 5.11 中-3)。このようなイベントが存在するとき、 ポアソン分布 × ガウス分布だけでは Gain を大きく見積もってしまう。 共同研究者の解析により、本研究で使用した PMT にも1段目で増幅されない成分が含ま れていることが分かっていて、指数関数分布を考慮していない解析よりも12%程度 Gain が 小さい。そのため、光量を12%程度少なく見積もっている可能性があり、この手法で算出を した場合には12.5 p.e./keVee となる。また、先述の DarkSide-10 の光量 (9.1 p.e./keVee) はこの修正された関数で求められた Gain を使って算出した値である。DarkSide 実験でも、 Gain を 13%小さく見積もっており、我々の測定と矛盾しない。



図 5.11: PMT ダイノード 1 段目増幅の概念図 [56]

#### 5.4.3 収集光量に対する検出器サイズの影響

式 3.1 中のアクセプタンス  $A_{VUV}$ ,  $A_{VL}$  は, LAr の自己減衰があるために検出器サイズの 影響を受けると考えられる。収集光量が 9.1 p.e./keVee の DarkSide-10 は  $\phi$ 24.1 cm, h23.5 cm の検出器を用いている。LAr 純度が十分に高く自己減衰長に 110 cm を仮定し,検出 器中心から PMT 窓面に入射するまでに 12 cm の LAr を通過したとすると,光量はおよ そ 0.9 倍になる。簡単に,この比で DarkSide の光量をスケールすると 10.1 p.e./keVee に なる。一方で,本研究で構築した検出器 ( $\phi$ 6.4 cm, h5 cm) では, 2.5 cm の LAr を通過し たとして光量はおよそ 0.98 倍になる。以上のことから,検出器サイズが小さいことも光量 の増加に寄与しているが,収集効率改善の多くを説明するわけではないことがわかる。

# 5.4.4 他実験との TPB 蒸着量の比較

本研究の TPB 蒸着量は他の LAr を用いた実験よりも少ない。例えば、DEAP3600 の球 状 (半径 85 cm)の検出器には膜厚 3  $\mu$ m 程度の TPB が蒸着されている。ただし、この蒸着 はるつぼ内に入れた TPB の量が検出器全体に一様に塗布された事を仮定し算出した値であ り [36],本研究と同程度の充填率 (30%)の場合には約 10  $\mu$ m である。また、DarkSide-10 と DarkSide-50 の円筒型検出器の PMT 前面には約 230  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> の TPB が蒸着されてい る [53][54]。このように、本研究では他実験の 1/3~1/10 程度の TPB を蒸着している。蒸 着量が多い場合には可視光透過率が小さく、PMT で検出されるまでの反射回数が多くな る。反射回数が多くなると、検出器内部の構造で吸収され光量が減少する。特に 2 相型の 場合には電場を形成するための内部構造が多いことから、その影響は顕著である。以上よ り、蒸着量を低く抑えたことによって、光量が増加した可能性がある。

# 6 TSV-MPPC Arrayの実装

第4章に記述した TPB 蒸着技術最適化の結果,検出光量は主に光子検出デバイスの検出 効率によってのみ制限される状況まで光収集効率を改善することができた。そこで,PMT よりも光子検出効率が高い半導体検出器の MPPC を導入し,さらなる検出光量の向上を 目指す。

# 6.1 Multi Pixel Photon Counter

# 6.1.1 MPPC の構造と動作原理

MPPC はフォトンカウンティングが可能な半導体光検出器である。Avalanche Photo Diode(以下 APD) にクエンチング抵抗を直列に接続したものを基本単位 (1 ピクセル) として、そのピクセルを 2 次元的に並べている。APD に逆電圧を印加しガイガーモードで駆動するため、あるピクセルに光子が入射し電子-正孔対を生成すると、その APD で雪崩増幅が発生し電流が流れる。APD 内部の電界はクエンチング抵抗に電流が流れることにより降伏点電圧 (*V*<sub>bd</sub>) まで減衰するため、APD の雪崩増幅は短時間で停止し次の光子を検出できるようになる。

また,1ピクセルの出力は同じになるように作られているため,MPPCからの出力電荷 量は光子を検出したピクセル数に比例する。例えば,2ピクセルが光子を検出した場合,出 力は1ピクセルの2倍となる。図 6.2 は FADC で取得した MPPC の典型的な波形で,そ れぞれ1ピクセルと2ピクセルの出力に対応している (t=-190 μs 付近:2ピクセル, t=-189 μs 前後:1ピクセル)。



図 6.1: MPPC の photon counting 概念図

図 6.2: MPPC の典型波形

MPPC は (1) 光子検出効率が高い, (2) 大きな Gain を有する, (3)1 光子識別が可能, (4)50 V 程度の低電圧で駆動する, (5) 磁場の影響を受けない等多くの利点を持つ光検出デ バイスである。光子検出効率と Gain は MPPC の印加電圧が大きいほど高くなる。また, MPPC は温度により降伏点電圧が変化することで出力電荷量が変化することが知られて いるが, 常に LAr 温度 (87K) で運用する本実験では MPPC の温度変化による出力値など の変化は少ない。 一方で、MPPCにはクロストークやアフターパルス、ラッチング等の注意すべき特性 がある。クロストークは雪崩増幅中に生じた光子が、他のピクセルに電子-正孔対を生成 させ、そのピクセルでも雪崩増幅が起きる現象で、出力電荷量を整数倍にする。アフター パルスは光子が入射してから少し遅れて同一ピクセルに発生する出力である。ラッチング は MPPC 印加電圧が高いときに発生する現象で、クエンチが十分にできずにカレントが 流れたままになる。室温環境下ではカレントにより MPPC素子が温まり降伏点電圧が上 昇するが、低温環境下では上昇しないために相対的に多くの電荷が出力されてしまう。こ れらは MPPC の印加電圧が大きいほど発生しやすく、MPPCの分解能を悪くする原因と なるため、光子検出効率や Gain とトレードオフの関係にある。

図 6.2 に示したように、MPPC 出力の立ち上がりは APD のガイガー放電による電流で 鋭く立ち上がる。その後、MPPC のキャパシタンスと抵抗の値に従う時定数で充電が進む ため、立ち下がりは比較的ゆるやかになる。MPPC の等価回路は図 6.3 に示すように、1 ピクセルごとの半導体センサーのキャパシタンス *C*<sub>1pix</sub> とクエンチング抵抗 *R*<sub>1pix</sub>, ピクセ ル数 *n*<sub>pix</sub> を用いて表される。このとき、読み出し回路に *R*<sub>receive</sub> の抵抗が存在する場合、 時定数は式 6.1 で表される。

$$\tau = n_{pix}C_{1pix} \times \left(\frac{R_{1pix}}{n_{pix}} + R_{receive}\right) \tag{6.1}$$



図 6.3: MPPC 等価回路

MPPC の1ピクセルの大きさ (ピクセルピッチ) も使用する MPPC を選択する上で重要 になる。光子検出効率や Gain,時定数は同じ世代であっても1ピクセルの大きさによって 異なる。ピクセルピッチが広い方が,MPPC 受光面積のうち,光子を検出できる面積の割 合 (開口率)が大きい。そのため,ピクセルピッチが大きい方が光子検出効率は高い。

また,Gain は,ピクセルピッチが大きい方が1ピクセルのキャパシタンスも大きいた め大きくなる。一方で,ピクセルピッチが狭い素子の方が,式6.1のキャパシタンスより 時定数は短い。また,立ち上がり時間についても狭い方が鋭く立ち上がる。そのため,ピ クセルピッチによってはLArのPSD能力が変化する。MPPCのダイナミックレンジは素 子内のピクセル数で決まり,数が多い方が広くなる。ピクセルピッチが小さい方が,それ に比例してピクセル数も多くなるため,検出光子数のダイナミックレンジは広い。このよ うに,ピクセルピッチについてもトレードオフの関係がある。

### 6.1.2 LAr 検出器で用いる MPPC への要請

LAr 検出器に導入する上で光検出デバイスに求める点を以下に挙げる。

(1) 極低温環境下 (87 K) での安定駆動

本研究では光検出デバイスをLAr に浸漬して使用するため,極低温環境下 (87 K) で 安定的に駆動する必要がある。今後実験での使用を予定している MPPC は極低温環 境下での使用は保証されていないため,LAr 中で MPPC の運用試験を行った。また, MPPC 素子だけではなくケーブルや読み出し基板も低温耐性を持たなければいけな いため,実験で使用する部材は液体窒素 (以下 LN<sub>2</sub>) で試験し低温耐性を確認した。

(2) 十分な受光面積

暗黒物質探索実験では標的物質の質量が大きいほど,つまり,より大きな検出器を使 用するほど探索感度は向上するが,検出器が大きくなるほど必要な総受光面積は広く なる。MPPCを使用する場合,受光面積が数 mm 角程度と小さいためチャンネル数 の増大は避けられない。例えば,ANKOK実験で使用してきた  $\phi$ 3 in. の PMT と同 じ面積を MPPC で確保するためには,おおよそ 130 個の MPPC(6 mm 角) が必要に なる。図 6.4 に ANKOK 実験で使用してきた PMT と,本研究で使用する MPPC(詳 細は後述)の受光面積を比較した。100 個以上の MPPC を手持ちの FADC で読み出 すことは現実的ではなく,今後検出器を大きくする際にもサイズに比例してチャン ネル数が増大してしまう。そこで,MPPC への電圧印加および信号読み出しチャン ネルをまとめる回路を実装した。



図 6.4: PMT と MPPC のサイズ比較

# (3) LAr の PSD 能力を悪化させない時定数

光検出器の出力波形がLArに影響する原因は,光量が大きい場合と小さい場合で異 なる。まず,各チャンネルで検出する光子数が少なく,1光子が離散化されて出力さ れる場合には,立ち上がり時間がPSD分解能に影響する。鋭く立ち上がるほど検出 時間の分解能が良いため,PSD分離能力を悪化させない。一方で,光量が大きく連 続的に MPPC 出力がある場合には,MPPC 出力の減衰時定数も影響する。ANKOK 実験の過去の研究より,時定数が100 ns 以下であれば PSD 能力を悪化させないこ とが分かっている [57]。

### (4) 1 光子を識別できる高い Gain

MPPC の Gain やクロストークを算出する際には,1,2... 光子のピークが分離してい る分布から算出する。また,MPPC の出力が離散化するほど小光量のイベントを見 る場合には,1光子の出力がノイズより優位に大きい方が良い。このような理由か ら,Gain は十分に大きい必要がある。

### (5) LAr の波長変換光に対する高い検出効率

本研究の主題である検出光量向上によるLAr 検出器の高感度化のために,光検出デ バイスの感度は可能な限り高い方が良い。

# 6.1.3 TSV-MPPC

本実験では TSV(Through Silicon via) タイプの MPPC を用いた。TSV はシリコンを貫 通して電極を通す (貫通電極) タイプの MPPC で筐体外周部に電極がないため,受光面と パッケージ側面の隙間は 4 面全てで 200 µm と,通常の MPPC と比較して小さくなってい る [58]。そのため,複数チャンネルの MPPC を並べる際にはデットスペースが小さくなり 光子の収集効率において有利になる。浜松ホトニクスからは,1ch のタイプ (S13360) と複 数の MPPC が一体型としてアッセンブリされている Array タイプ (SIS3316) のものが市 販されており,Array タイプについては裏面が電極かコネクタの 2 種類がある。図 6.5 左 側が 1ch タイプの受光面の写真で,貫通電極は周囲と比較して薄い色の 4 つある四角い部 分を通っている。また,右側の写真は Array タイプの写真で,1ch タイプが 4×4 個並んで いる。16 個の MPPC それぞれに異なる電圧を印可でき,信号もそれぞれで読み出せる。



図 6.5: TSV MPPC 外観 (左:1ch タイプ,右:Array タイプ)

浜松ホトニクスが公表している TSV タイプ (S13361-6050 シリーズ)の光子検出効率 (PDE) と Gain, クロストーク確率のスペックシートを図 6.6 に示す。常温環境下では, 420 nm の光に対して 50%以上の高い PDE を持つことが分かっている。また, ピクセル ピッチが大きい 75U(ピクセルピッチ=75  $\mu$ m)では 50U(ピクセルピッチ=50  $\mu$ m) よりも開 口率が大きいため PDE は 60%以上になる。このように, TSV タイプの MPPC には PMT よりも可視光に感度が高いものがあり,また,Arrayタイプがあるため受光面積の確保も 比較的が容易である。そのため,本研究ではTSV-MPPCをLAr検出器に実装するMPPC の候補として R&Dを進めた。TSV-MPPCを PMT の代わりに LAr 検出器に導入するこ とにより,光収集効率は従来の2倍以上になることを期待している。



図 6.6: TSV MPPC のスペック値 (浜松ホトニクス測定 [59])

一方で,浜松ホトニクスが保証している TSV タイプの駆動可能温度は-20 °C と LAr 温度 (87 K) での使用は想定されていない。そこで,まずは 1ch タイプを用いて LAr 試験を行うことにより,TSV 構造の低温耐性を確認した。その後,Array タイプを用いた受光面積確保の R&D について説明する。

# 6.2 1ch TSV-MPPC を用いた LAr 光の読み出し試験

# 6.2.1 測定セットアップ

1ch TSV-MPPC (S13360-6050VE) を用いて LAr-TPB 波長変換光の読み出し試験を行っ た。測定に使用した MPPC は表 6.1 に示したとおり, TSV タイプと真空紫外光に直接感 度を持つ VUV タイプの 2 種類を 1 つずつ用いた。VUV タイプについては既に使用実績 があり,以前の測定では PDE~ 10% だった [35][60]。

表 6.1: 使用したサンプル							
MPPC	Type No.	受光面サイズ	Pixel Pitch				
TSV	S13360-6050VE	6  mm角	$50~\mu{ m m}$				
VUV4	S13370-5730	6  mm角	$75~\mu{\rm m}$				

測定は図 6.7 に示すような, MPPC の直前に <sup>241</sup>Am を置いた簡単なセットアップを用 いて行った。MPPC と <sup>241</sup>Am はアルミニウムの治具を用いて 1.5 cm 離して固定し, LAr に浸漬させる。<sup>241</sup>Am からの  $\alpha$ 線 (5.5 MeV) が LAr を励起し, そのシンチレーション光 を MPPC で検出する。ただし, TSV タイプの窓面には 30.6  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> の TPB を蒸着し,



図 6.7: 測定セットアップ

TPB で波長変換した可視光を見ている。VUV タイプについては蒸着せずに,真空紫外の LAr 光を直接検出している。2 つの MPPC はアルミニウム板で仕切り,隣の<sup>241</sup>Am 由来 のシンチレーション光を検出しないようにしている。トリガーは MPPC 信号を検出した際 に TSV と VUV4 のそれぞれで発行する。MPPC は MPPC 用駆動回路 (HAMAMATSU, C12332) を用いて電圧を印加し,信号は FADC(SIS3316) で取得し波形として記録する。 C12332 はアンプ機能があり,信号は約 10.9 倍される。また,ノイズを落とすために,HV 線の MPPC 直前にローパスフィルターを構成している。

<sup>241</sup>Am を点光源と仮定すると、1.5 cm 離れた 6 mm 角の受光面に入射する光子数は立 体角より約 2400 光子と期待される。ただし、 $\alpha$ 線による LAr シンチレーション光の W 値 として  $W_{\alpha} = 27.5 \text{ eV/photon}[61]$ を用いた。TSV については波長変換された後の光を見 るため、例えば一様に 420 nm 光が放出されるとすると、MPPC 側とその反対側に等しく 放出されるとして、入射光子数は半分になる。図 6.8 に TSV で取得した <sup>241</sup>Am イベント の波形を示す。TSV-MPPC に TPB を蒸着したセットアップで <sup>241</sup>Am で励起された LAr 光を検出することができた。このことから、TSV 構造が LAr の極低温環境下でも機能す ることを確認できた。

また、Gain キャリブレーションに用いる青色 LED を TSV と VUV4の間に設置し、2 つの MPPC に LED 光を照射できるようにした。LED はファンクションジェネレータを 用いて駆動し、MPPC の検出光子数の期待値が約 0.1 光子になるように LED の電圧を調 整した。トリガーはファンクションジェネレータのタイミングで発行している。図 6.9 に LED run の MPPC 出力波形を示す。



図 6.8: <sup>241</sup>Am イベントの平均波形 (TSV)

図 6.9: LED イベントの波形 (TSV)

# **6.2.2** LED 光を用いた Gain と N<sub>pix</sub> の算出

MPPC は印加電圧に応じて Gain が線形に変化し, 1pixel ごとの出力値は揃えられている。一方で,クロストーク等によって「出力値/Gain」が検出光子数よりも大きくなることが分かっている。そこで,Gain と"1 光子検出の出力電荷量/Gain"に相当するパラメータ N<sub>pix</sub> を LED データを用いて算出した。

まず,LED データにおける MPPC 出力電荷量を,t=[+80 ns,+500 ns] の範囲の積分 値とする。積分範囲を大きく取りすぎるとホワイトノイズの影響が大きくなり,ベースラ インの分散が大きくなってしまう。そのため,MPPC 出力を十分に拾える積分範囲で,で きるだけ狭くした。また,ペデスタルは1イベントごとに計算し,t=[-1 μs, 0 μs] の範囲 の平均値としている。このように算出した積分電荷量の典型的な分布を図 6.10 に示す (印 加電圧 44 V)。数光子とペデスタルに対応する離散化したピークが確認でき,各ピーク間 の電荷量が Gain に相当する。



図 6.10: LED データの典型的な電荷分布

得られた電荷分布を式 6.2 に示したポアソン分布  $P(n; \mu)$  とガウシアン  $Gaus(x; mean, \sigma)$  の積でフィットする。第1項はペデスタル,第2項は1光子イベントのピークを表してお
り,第2項はクロストークの影響を考慮して (1 - X) がかかっている。第n項  $(n \ge 3)$  は ガウシアンのスケールをフリーパラメーター  $A_n$  としている。また,  $N_{pix}$  は電荷分布の単 純平均  $Q_{mean}$  を用いて  $N_{pix} = Q_{mean}/(Gain \times \mu)$  と定義した。また,  $P(1;\mu)$  に (1 - X)のファクターがかかっているため、 $\mu$  はペデスタルのイベント数から決まる。イベント 数とビン幅を固定することで、ポアソン分布の期待値は検出光子数の期待値に対応する。  $\mu, Q_{ped}, \sigma_{ped}, X, Gain, \sigma_{SPP}, A_n$ をフリーパラメーターとしてフィットを行った。

$$f = \text{Event}_{all} \times \text{BinWidth} \times$$

$$\{ P(0; \mu) \text{Gaus}(x; Q_{ped}, \sigma_{ped})$$

$$+ (1 - X) P(1; \mu) \text{Gaus}(x; Q_{ped} + Gain, \sqrt{\sigma_{ped}^2 + \sigma_{SPP}^2}) \}$$

$$+ \sum_{n=2} A_n \times \text{Gaus}(x; Q_{ped} + n \times Gain, \sqrt{\sigma_{ped}^2 + n \times \sigma_{SPP}^2})$$

$$(6.2)$$

MPPC の印加電圧 Vop = 43 V~50 V の範囲で、0.5 V づつ変えながら Gain と N<sub>pix</sub> を 算出した。Gain 測定結果を図 6.11 に示す。黒プロットが TSV を、赤プロットが VUV4 の各電場点での測定値を表す。また、直線は  $Q_{FADC} = k \times (V_{op} - V_{bd})$  を用いたフィット 結果で、Gain が線形に従っていることが確認できた。ただし、 $V_{bd}$  は降伏点電圧で、オー バーボルテージを  $V_{ov} = V_{op} - V_{bd}$  と定義する。また、表 6.2 に示したように、Gain 測定 結果は常温でのスペック値とオーダーで一致しており、LAr 環境下でも正常に信号が出力 されることが確認できた。誤差は Gain の線形フィットのエラーのみを計上している。

表 6.2: Gain 測定値とスペックシートの比較 (Vov = 3 V)

MPPC	スペック値	測定値
$\mathrm{TSV}$	$1.7  imes 10^6$	$(2.05 \pm 0.02) \times 10^{6}$
VUV4	$5.8  imes 10^6$	$(4.47 \pm 0.03) \times 10^{6}$

図 6.12 に N<sub>pix</sub> の測定結果を示す。ただし,Gain は図 6.11 に示した線形フィットの結果 を用いた。黒プロットが TSV を,赤プロットが VUV4 の各電場点での測定値を表す。印 加電圧が高いほどクロストークやラッチングの影響が大きく,N<sub>pix</sub> も大きくなる。また, 測定結果は式 6.3 でフィットしている。

$$f = \sum_{i=0}^{\inf} (i+1)(1-x)x^{i}$$

$$x = p0 \times V_{ov}^{p1}$$
(6.3)



## 図 6.11: Gain 測定結果

図 6.12: N<sub>pix</sub> 測定結果

# 6.2.3 <sup>241</sup>Am イベント

 $^{241}$ Am イベントの検出光子数と、ジオメトリーから推定できる期待検出光子数を比較する。まず、 $^{241}$ Am と前節で算出した *Gain*、 $N_{pix}$  から検出光子数を算出する。

<sup>241</sup>Am イベントの検出電荷量を,図 6.8 の t=[-1  $\mu$ s, +20  $\mu$ s] の積分値と定義する。また、ペデスタルは1イベントごとに計算し、t=[-5  $\mu$ s, -4  $\mu$ s] の範囲の平均値としている。 イベントごとに電荷量を計算すると、図 6.13 のように<sup>241</sup>Am の $\alpha$ 線ピークが確認できる。 ただし、図 6.13 は印可電圧が 45 V( $V_{ov} \sim 3$  V) のときの分布である。この<sup>241</sup>Am イベン トをガウシアンでフィットした平均値を電荷量  $Q_{Am}$  とする (FADC count)。前節で求めた Gain と  $N_{pix}$ を用いて検出光子数  $N_{Am}$ を式 6.4 のように算出した。<sup>241</sup>Am ピークはおよ そ 500 光子に相当する ( $V_{ov} \sim 3$  V)。

$$N_{Am} = \frac{Q_{Am}}{Gain \times N_{pix}} \tag{6.4}$$



図 6.13: 典型的な<sup>241</sup>Am データの出力電荷分布 (印加電圧 45 V)

図 6.6 より  $V_{ov} \sim 3$  V の時の光子検出効率が約 40%程度であることと,ジオメトリーか ら予想した受光面への入射光子数 1200 光子を仮定すると,TSV-MPPC では 480 光子の 検出が期待され,本測定結果はスペック値と矛盾しない。ただし,可視光である波長変換 光は,<sup>241</sup>Am を固定している治具等で反射してから TSV-MPPC で観測され,検出光子数 がジオメトリーの計算より多くなる可能性があることに注意が必要である。

## **6.3** MPPC のチャンネル接続

現在 ANKOK 実験で使用している FADC(SIS3316) は1 ボードあたり 16ch の信号を読 み出すことができるが、受光面積に比例して多くなる TSV-MPPC の信号すべてを個別に 読み出すのは現実的ではない。また、実験デザイン的にも、数 mm で分けられている光検 出デバイスで読むほどの位置分解能は必須ではない。そこで、複数の MPPC の信号を1 チャンネルとしてまとめて読み出すことができる回路を実装した。

## **6.3.1** MPPC のチャンネル接続方法

MPPC の接続は既にいくつかの実験グループにより R&D が行われており,直列接続, 並列接続とそれらを組み合わせた回路が使われている。ここでは,単純な直列接続と並列 接続,今回採用したハイブリット接続の特性について述べる。

#### 直列接続

直列接続は図 6.14 に示すように接続する。合計のキャパシタンスが小さくり時定数 が短くなるため、大光量の際の PSD 能力は有利である。一方で、MPPC 印加電圧 は接続する MPPC 数に比例して増加していく。また、Gain は MPPC 数が多いほど 低下する。



図 6.14: MPPC の直列接続回路

#### 並列接続

並列接続は図 6.15 に示すように接続する。接続する MPPC が増えると合計キャパ シタンスが増加するため,時定数が長くなり大光量の PSD を悪化させる。一方で, Gain は大きくなり,印加電圧も並列であるため増加しない。

## ハイブリット接続

ハイブリット接続は MEGII 実験で考案された接続手法で,図 6.16 のように直列接 続と並列接続を組み合わせている [62][63]。間にコンデンサを挟み MPPC を直列に 接続し,抵抗を介して各 MPPC の前後に HV 線と信号線をつなぐ。この回路では, MPPC のバイアス電圧は DC であるために,コンデンサは通過せずに MPPC は並



図 6.15: MPPC の並列接続

列的に接続することになる。並列に電圧が印加されるため,MPPCの接続数を増や しても必要な印加電圧はMPPCが1つの時と同じ値でよい。抵抗はMPPCにかか る電圧を揃えるために、1素子あたりに配置する抵抗の値が同じになるように初段 と終段の抵抗は2Rにしている。一方で,速い信号は抵抗を通らずにコンデンサを 通過するため,直列的に読み出される。そのため,出力は直列接続した時と同様に 時定数が短くなり,Gainは小さくなる。



図 6.16: MPPC のハイブリット接続 [62][63]

MPPC のバイアス電圧 *V<sub>bias</sub>*, 時定数, Gain について, 上記の接続方法ごとに利点・欠 点を表 6.3 にまとめる。

14.0.0. 百安航子44の村木のよし八木				
	$V_{bias}$	時定数	Gain	
直列	×	0	×	
並列	0	×	0	
ハイブリット	0	0	Х	

表 6.3: 各接続手法の利点および欠点

運用上 MPPC への印加電圧は低い方が望ましい。また, PSD について過去の研究より, 検出光子が離散化しないほど光量が大きい場合,時定数が 100 ns 以上では波形弁別能力 が悪化することが分かっている。

ブレッドボード上に簡易的に構成したハイブリッド回路で読み出した MPPC 波形を図 6.17 に示す。ただし,50Uの MPPC を使用し,抵抗が1 kΩ,キャパシタンスが100 nF の素子を用いている。図 6.17 の黒線が1 つの MPPC,赤線が4 つの MPPC をハイブリッ ト接続した波形を表す。ハイブリット接続により時定数が短くなり,LAr 光を読み出すの に十分短い時定数を確認できた。また,1chの MPPC を駆動するのと同じ駆動電圧で動 作している。そこで本研究では,LAr 光の PSD 能力を悪化させないようにハイブリット 接続を MPPC のチャンネル接続回路として採用した。



図 6.17: 1ch とチャンネル接続した MPPC 平均波形の比較

## **6.3.2** MPPC 読み出し基板の設計・製作

TSV-MPPC Array をアッセンブリでき,ハイブリット回路を実装した読み出し基板を 製作した (図 6.18)。基板の設計は PCB 設計ソフトウェアの"Autodesk EAGLE"を用いて 行った。

基板のサイズは 50.5 mm×80.5 mm×1.6 mm で,基板の材質は FR-4 とした。また,基 板の両面を使用している。MPPC は 4×4 チャンネルの裏面にコネクタが実装してあるタ イプの TSV-MPPC Array (HAMAMATSU, S13361-60\*\*AE-04) を用いる。1Array あた り SAMTEC 社のコネクタ ST4-40-1.00-L-D-P-TR が 2 つ実装されており,読み出し基板 側のコネクタ SS4-40-3.00-L-D-K-TR に固定する。また, MPPC は自然には外れない程度 に,コネクタのみで十分な強度で固定できる。1 基板あたり 4 枚の Array をアッセンブリ し,合計で 64 個の MPPC を駆動することができる。Array 同士には 0.5 mm の間隔が空 くように設定し,互いに干渉しないようにした。基板左上には ANKOK マークを入れて いる。



図 6.18: TSV-MPPC Array の読み出し基板

次にチャンネル接続だが、図 6.18 の右下に示すように 1×4 の 4 つの MPPC を 1 つの信 号線としてまとめている。この接続だと、1 チャンネルが 1MPPC コネクタの片側の電極 と対応し配線の取り回しがしやすいため、このようなチャンネル接続を採用した。一方で HV 線については, さらにケーブル数を削減するために, 1 コネクタに 1HV 線をアサイン した。すなわち, 2 つのチャンネル (4MPPC×2ch=8MPPC) を 1 つの HV 線で駆動する (図 6.19)。1 基板では 16signal+8HV=24 本のケーブルで 64 枚の MPPC が駆動できる。



図 6.19: MPPC 接続回路

ハイブリット接続の抵抗とコンデンサは基板の2面に分けて実装した。図6.16の上側抵抗 とコンデンサはMPPCと同じ面に,図下側の抵抗はMPPCと反対側についている。ただし, 抵抗はパナソニックの厚膜チップ抵抗 (1 kΩ:ERJ3EKF1001V, 2 kΩ:ERJ3EKF2001V), コンデンサはTDK 社の積層セラミックコンデンサ (100nF:CGA3E3X7S2A104M080AB) を用いた。また,配線は+HV になるラインは MPPC 側,信号線は MPPC と反対の面に 分けている。読み出し基板からの信号線の取り出しは市販のフレキシブルフラットケーブ ル (FFC) と FFC-1.28 mm ピッチ変換基板に接続して行う (図 6.20)。FFC は 40pin のケー ブルを使い,グランド (G)-信号 (sig)-HV-信号-G-G-sig-HV-sig-G... の順番になるように した。



図 6.20: FFC-1.28 mm ピッチ変換基板

以上の MPPC 読み出し基板の動作試験を,LN<sub>2</sub> に浸漬した簡易的なセットアップで行った。LED を数 10 ns 幅のパルス電圧で点滅させたものを光源に用い,パルス電圧のタイミングをトリガーとしている。また,電圧の印加およびデータ取得は MPPC 駆動モジュールの EASIROC を用いた。横軸にチャンネル,縦軸に ADC count をとったヒストグラムを図 6.21 に示す。

EASIROCのch16からch31に信号を入力しており、2チャンネルごとにボードのArray



図 6.21: 極低温での全チャンネル動作確認

を上下にまたいでいる。つまり, ch16,17,20,21... はボードの ANKOK マーク側2つの Array に, ch18,19,22,23... は反対側2つの Array に対応する。LED は ANKOK マーク側を向く ように設置していたため,図 6.21 のような光量分布になっている。以上より,LAr より も温度が低い LN<sub>2</sub> 環境下で駆動することを確認できた。また,MPPC の波形については マージした 16 チャンネルのうち 2 チャンネルのみを駆動し確認した (図 6.22, 75U)。



図 6.22: ハイブリット回路基板を用いた MPPC 出力波形

## 6.4 LAr 検出器への導入

以上の試験より,TSV-MPPC Array およびハイブリット接続回路を実装した読み出し 基板が,極低温環境下で動作することを確認できた。そこで,TSV-MPPC Array を用い て LAr 試験を行った。

#### 6.4.1 セットアップ

#### 1相型 TSV-MPPC Array LAr 検出器

TSV-MPPC Array を用いた1相型の検出器を構築した (図 6.25)。ただし,筐体部分は ESR を直方体に成形したものと MPPC 読み出しボードをテフロンテープで巻きつける簡 易的なものとしている。有感領域は 50.5 mm×50.5 mm×54 mm の約 140 cm<sup>3</sup> の直方体 である (LAr:約 200 g)。検出器は SUS とアルミニウムの治具で固定している。ただし,筐 体の ESR およびテフロンテープには液抜き用の穴を辺の部分に開けており,GAr を有感 領域から効率よく抜くために 45 度傾けて設置してある。

光検出デバイスには 8 枚の TSV-MPPC Array を使用しており、向かい合う 2 面に 4 枚 ずつ、つまり 2 枚の読み出し基板を配置している。今回の Run は R&D のための実験で あったため、MPPC は S13361-6050AE と S13361-6075AE のピクセルピッチが異なる 2 種 類を、それぞれの面に分けてアッセンブリした。受光面にはそれぞれ 75U:31.1  $\mu$ g/cm<sup>2</sup>, 50U:32.5  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> の TPB を蒸着している。蒸着した受光面の様子を図 6.23 に示す。また、 ESR には MPPC よりも多い約 42  $\mu$ g/cm<sup>2</sup> の TPB を蒸着した。



図 6.23: 蒸着後の MPPC 受光面 (左:蛍光灯下,右:ブラックライト下)

信号線と HV 線は FFC で取り出し,ボードごとに FFC-1.28mm ピッチ変換基板に接続した。また,フィードスルーやケーブルの本数を削減するために,電圧印加は1つの読み出し基板に対して1つの HV 源から行っている。つまり,1つの MPPC ボードを駆動するのに 16 チャンネルの信号線と1 チャンネルの HV 線を 200L LAr 容器内に導入して

いる。HV 線の分岐は FFC-1.28mm ピッチ変換基板上にローパスフィルターと一緒に手 はんだで実装した。ピッチ変換基板までは同軸ケーブルを用い,フィードスルーは信号線 に 50pin D-sub feedthrough を,HV 線に BNC feedthrough を用いた。MPPC 駆動回路 (HAMAMATSU,C12332) で電圧印加し,信号はハイパスフィルターを通した後 FADC で 波形データを取得する。ここで,基板やフィードスルー,ケーブル,FADC のインピーダ ンスは揃えていないため,信号の反射などが起こるセットアップになっていることに注意 する。インピーダンスマッチングなどの改善は今後の課題である。



図 6.24: HV 線の分岐部分

放射性同位体の<sup>241</sup>Am を検出器直上に設置した。<sup>241</sup>Am は  $\alpha$  崩壊し,それとほぼ同時 に 59.5 keV の  $\gamma$  線を放出する。この  $\alpha$  線をタグすることにより,純度の高い 59.5 keV の  $\gamma$  線イベントを得ることができる。この線源はコバール製の丸板 ( $\phi$ 9.2 mm) に白金箔の土 台 (2 mm×2 mm×100  $\mu$ m) が乗り,その上に<sup>241</sup>Am が電着されているものである。その 構造により,線源の向きによって  $\gamma$  線が直接検出器に届く確率が異なる。そこで,<sup>241</sup>Am は図 6.25 に示す位置に,検出器を向くように設置している。この時  $\alpha$  線による LAr 光は 上方では直接検出することができないため,<sup>241</sup>Am が見ている検出器の外壁に TPB を蒸 着した ESR を貼り付けた。<sup>241</sup>Am 由来の  $\gamma$  線が検出器部材に当たらずに入射する範囲は, 検出器上部で直径 4 cm の範囲程度である。



図 6.25: 1 相型 TSV-MPPC Array LAr 光検出器

## veto 検出器

光検出デバイスとして 5 つの PMT (HAMAMATSU,R6041-506MPD ×4, R11065 ×1) を使用し,窓面には TPB が蒸着してある。ただし,全ての PMT はポジティブベースで運 用したため,第4章で考慮した PMT 筐体の高電圧は気にする必要がない。これを,PMT 窓面に合わせて穴を開けたステンレス板に乗せ検出器の約7 cm 上側に設置した。PMT は R11065 が MPPC 検出器の直上に,R6041-506MPD がその周辺を囲うように配置してい る。また,この検出器は veto としてだけではなく,<sup>241</sup>Am の  $\alpha$ 線を見ることにより,59.5 keV  $\gamma$ 線のタグ検出器としても機能する。



図 6.26: 1 相型 TSV-MPPC Array LAr 検出器と veto 検出器

キャリブレーション用レーザー

MPPC の Gain や波形などのキャリブレーションに幅が 10 ns 程度のナノ秒パルスレー ザー (Thorlabs, Inc., NPL45B)を用いた。レーザーは 200L LAr 容器外の常温環境下に 設置し,拡散板 (NIKON, SW-12)を通したのちに光ファイバーで検出器内に導入してい る。また,レーザーの光量調整はカメラ用の減光板 (Kenko, 72S PRO-ND500, ND200, ND100, ND8)を拡散板と一緒に挟むことで行った。レーザーはファンクションジェネレー タをトリガーにして駆動でき,そのタイミングを FADC のトリガーとしても使用した。

## **6.4.2** <sup>241</sup>Am $\gamma$ 線イベント

図 6.27 に MPPC と veto 検出器の全てのチャンネルで LAr 光を検出しているイベント の波形を示す。上 2 段が 75U(赤色),次の 2 段が 50U(青色),下 1 段が veto 検出器の波形 を表す。図 6.27 のイベントは、veto 検出器では <sup>241</sup>Am の  $\alpha$ 線 (5.5 MeV) を、MPPC 検 出器では  $\gamma$ 線 (59.5 keV) を検出している。4 つの MPPC をハイブリット接続する回路を 実装することにより、LAr 環境下において 8 個の TSV-MPPC Array (128 個の MPPC 素 子) を FADC で読み出せるようになった。ただし、MPPC 出力には LAr 波形解析に影響 があるアンダーシュートなどがあるため今後改善が必要になる。波形については後述する が、アンダーシュートがあり積分値が 0 になってしまうため、波形解析を行った。



図 6.27: LAr 光イベント波形

トリガータイミングから 1 μs 幅の積分値の分布を図 6.28 に示す。ただし、トリガーは MPPC のセルフトリガーで発行している。従来の解析では 5 μs 以上の時間幅で積分し ているが,アンダーシュートがあるため暫定的に積分幅を1 $\mu$ sとした。図 6.28 はそれぞれ上段左:75U 全チャンネルの和,上段右:50U 全チャンネルの和,下段左:veto(R11065),下段右:veto(R6041-506MPD) に対応する。MPPC の分布では、ペデスタル以外に 2 つの ピークが確認できるが、MPPC 検出器にライトリークがあり <sup>241</sup>Am の  $\alpha$ 線が見えている ため、光量が低い方のピークを作っている。そこで、veto 検出器で <sup>241</sup>Am の  $\alpha$ 線などの 光が見えているイベントをカットする (黒:取得した全イベント、赤:イベントセレクション 後)。MPPC ではライトリークに対応するピークが消え、S/N が良い <sup>241</sup>Am の  $\gamma$ 線 (59.5 keV) に対応するピークが得られた。ライトリークは、筐体部分が ESR+シールテープの みの簡易的なために、検出器の壁全体から漏れだしているためである。そのため、テフロ ン (PTFE) で検出器を構築すれば改善できると考えている。



図 6.28: <sup>241</sup>Am イベントの分布

#### **6.4.3** MPPC 出力波形の評価

MPPCの波形を,MPPCの応答より十分に発光時間が短いレーザーを光源にしたデー タから評価した。今回製作したセットアップにはアンダーシュートや,チャンネル間の電 気的なクロストークが存在している。そのようなノイズ成分の除去は今後の課題である。 本論文内では,この成分をレーザーデータから見積り,補正することによって光量を算出 するまでを行う。

図 6.29 に MPPC 出力波形を示す。ただし、75U と 50U それぞれで 2 チャンネル分を抜

粋していて, 上段 (赤) が 75U, 下段 (青) が 50U の波形である。波形を見ると, 出力の後 にアンダーシュートがある。また, 出力波形の最初にスパイク的なノイズが乗っており, これはチャンネルによって大きさが異なる。これら 2 つのノイズは 75U と 50U ともに乗っ ている。



図 6.29: MPPC の出力波形

ここで、それぞれのボードで単純に 16 チャンネルの出力を足し上げ、平均をとると図 6.30 のようにスパイク的なノイズはキャンセルできる。ただし、左図は 75U、右図は 50U の波形である。この原因は分かっていないが、簡単のためにそれぞれのボードで足し上げ た波形を用いて評価を進める。得られた波形を以下のように関数化した。ガウシアンと 自然対数の畳み込み積分を使い、関数は式 6.5 とした。図 6.30 の赤線は以下の式を用い てフィットした結果である。アンダーシュートが振動しながら減衰しているように見え、 $t \sim 1 \mu s$ の構造は説明できていない。しかし、アンダーシュートするまでと、2  $\mu s$  以降は 概ね説明できているため、暫定的にこの関数を用いて LAr 蛍光波形を考える。

$$f_{\text{MPPC}}(t) = -A \times \left( \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_1}, \sigma) - \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_2}, \sigma) \right) \quad (6.5)$$
$$\exp\text{Gaus}(t; t_0, \lambda, \sigma) = \frac{\lambda}{2} e^{\frac{\lambda}{2}(\lambda\sigma^2 - 2(t-t_0))} \text{Erfc}(\frac{\lambda\sigma^2 - (t-t_0)}{\sqrt{2}\sigma})$$



図 6.30: ボード内で sum した MPPC 出力波形 (左:75U,右:50U,赤線は式 6.5 でのフィット結果)

LAr 波形に適用するために、上記の MPPC 出力波形と LAr 発光分布を畳み込み、 $^{241}$ Am 線源データに適用する。ここで、LAr 蛍光の fast 成分の時定数を  $\tau_f$ , slow 成分の時定数  $\epsilon_{\tau_s}$ を用いて、関数は式 6.6 とした。

$$f_{\text{MPPC}\otimes\text{LAr}}(t) = -A' \times ((1 - PSD) \times (\text{Ff}_1 - \text{Ff}_2) + PSD \times (\text{Fs}_1 - \text{Fs}_2))$$
(6.6)  

$$Ff_1 = (\tau_f \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_f}, \sigma) - \tau_1 \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_1}, \sigma))/(\tau_f - \tau_1)$$
  

$$Fs_1 = (\tau_s \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_s}, \sigma) - \tau_1 \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_1}, \sigma))/(\tau_s - \tau_1)$$
  

$$Ff_2 = (\tau_f \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_f}, \sigma) - \tau_2 \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_2}, \sigma))/(\tau_f - \tau_2)$$
  

$$Fs_2 = (\tau_s \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_s}, \sigma) - \tau_2 \times \exp\text{Gaus}(t; t_0, \frac{1}{\tau_2}, \sigma))/(\tau_s - \tau_2)$$

図 6.31 に LAr 蛍光波形 (黒:データ) と,そのフィット結果 (赤) を示す。75U と 50U の ボードとも,特にテール部分のずれが大きいが,これは MPPC 波形のアンダーシュート をうまく説明できていないためと思われる。この関数を積分することにより,LAr 蛍光の 真の光量と,MPPC 出力の積分量の比 *C<sub>wave</sub>* が算出できる。75U と 50U それぞれで算出 した結果,積分幅が 1 µs のとき (75U, 50U)=(0.468, 0.455) だった。

#### 6.4.4 MPPC Gainの評価

通常,図 6.13 のように離散化した数光子の電荷分布から Gain や N<sub>pix</sub> を算出する。一 方で、今回のセットアップでは十分に大きな Gain が得られず、離散化したピークが確認 できなかったため、以下のようにして Gain や N<sub>pix</sub> を算出した。

まず,キャリブレーション用のレーザー光量を小さく設定し,2光子以上を検出する期 待値を限りなく0にする。この時,MPPC出力は「ペデスタルイベント」,「1光子を検出



図 6.31: ボード内で sum した LAr 蛍光波形 (左:75U,右:50U,赤線は式 6.6 でのフィット 結果)

し、1 ピクセル分の出力をしたイベント」、「1 光子を検出し、クロストークなどにより 2 ピクセル分以上のの出力をしたイベント」の3つが想定できる。ここで、全イベントから 「ペデスタルイベント」を除いた後のイベントの平均値は *Gain* × *N*<sub>pix</sub> に相当する。

以上のことから、レーザーを off にしたデータと、小光量に設定したデータから  $Gain \times N_{pix}$  を算出した。ただし、MPPC 出力の積分範囲は 1  $\mu$ s としている。図 6.32 に MPPC 出力電荷分布を示す (黒:レーザー on、赤:レーザー off、緑:黒-赤)。



図 6.32: 小光量レーザー MPPC 出力分布 (Vov ~6 V)

## 6.4.5 検出光量の評価

MPPC 波形からのスケールファクター  $C_{wave}$  と  $Gain \times N_{pix}$  を用いて,以下の式に従い検出光量を算出する。ただし, $Q_{Am}$  は図 6.28 の全吸収ピークをガウシアンでフィットした平均値を用いる。



図 6.33: Gain × N<sub>pix</sub> 測定結果 (V<sub>ov</sub> ~6 V)

$$LY = \frac{Q_{Am}}{Gain \times N_{mix}} \frac{1}{C_{wave}}$$
(6.7)

75Uと50Uでそれぞれ,表6.4に示す結果が得られた。以上の解析では,MPPC波形 を説明できていない部分があるなど,不定性が大きい解析である。また,光量の時間安定 性なども見ていない。そのため,20%の誤差を付けることとし,今回構築した MPPCの 収集光量を26.1±5.2 p.e./keVeeと見積もる。

表 6.4: MPPC 検出器の収集光量測定結果

MPPC	$PDE(V_{ov} = 6 V)$	期待光量 p.e./keVee	測定值 p.e./keVee
$75\mathrm{U}$	62%	12.4	14.6
$50\mathrm{U}$	53%	10.6	11.5
Sum	-	23.0	26.1

### 6.5 まとめと考察

## 本章のまとめ

本章では、さらなる検出光量向上のために、可視光に感度が高い半導体検出器の TSV-MPPC Array を LAr に実装する R&D について述べた。まず、TSV 構造を持つ MPPC は LAr の極低温環境下での駆動は保証されていなかったが、1ch タイプと Array タイプの TSV 両方ともに、LAr 温度で駆動することを確認した。これにより、従来の LAr 検出器 より光量を 2 倍程度向上させる原理的検証が完了した。

また,8個のTSV-MPPC Array (MPPC 128個分)を用いた簡易的なLAr 検出器を構築 した。MPPC をハイブリット接続することにより MPPC の駆動と信号の読み出しを行い, FADC やフィードスルーのチャンネル数を削減した。MPPC 出力波形にアンダーシュー トや電気的なクロストークが乗るなど,改善するべき点がいくつかあるが,解析的に補正 することにより光量を算出した。その結果,26.1±5.2 p.e./keVeeという,従来の光量の2 倍以上の大光量を検出することができた。

## Gain の不足

MPPCのキャリブレーションや小光量イベントのトリガー,小光量でのPSD能力の確 保などのために1光子を識別できる程度のGainが必要だが,本実験のノイズレベルより も優位に大きなGainが得られなかった。これはMPPCをハイブリット接続(信号線は直 列)に接続していることによりGainが小さくなることも要因の一つになっている。本研究 では,4つのMPPCを接続しているためGainは通常の1/4になる。今後,ハイブリッド 接続をさらに2チャンネル分を並列に接続しMPPCのGainを大きくすることや,基板ま たはFADC前にアンプを実装するなどの改善が必要である。

# 7 まとめと今後の展望

## 7.1 各章のまとめ

第1章では暗黒物質,特に本実験グループが探索を行っている WIMP に主眼を置いて 概要を述べた。WIMP が暗黒物質の最有力候補の1つである理由の,いわゆる"WIMP miracle"や,世界的探索の現状について記述した。10 GeV/c<sup>2</sup> 以上では希ガス元素の Xe, Ar が WIMP-核子散乱断面積 10<sup>-40</sup> ~ 10<sup>-46</sup> cm<sup>2</sup> 程度までを棄却している。世界的にも液 化した希ガス元素を標的に用いた実験は盛んに行われており,ANKOK 実験でも LAr を 用いて WIMP 探索を行っている。

第2章ではLArの諸性質,特に発光特性について述べた。LAr光は強い PSD 能力があ り,WIMP 探索における ER 背景事象を WIMP 事象から分離できることを見た。この分 離能力は検出光量が多いほど高い

第3章では、ANKOK 実験の物理目標,これまでの研究により準備してきたセットアッ プや結果などについて概観した。また,探索感度向上のための課題をあげ,検出器の開発 要素を述べた。その中で,本研究では光量向上に主眼をおき,「TPB 蒸着技術の最適化」と 「TSV-MPPC Array の実装」を行った。

第4章では自作した TPB 蒸着装置について説明し,蒸着量の定量化と波長変換効率,可 視光透過率の評価について解説した。その評価の結果を受け TPB の塗布量を決定し,安 定的かつ再現性を持つようにその真空蒸着が行えるようにした。

第5章では、小型の1相型 LAr 光検出器を構築し、TPB 蒸着量を低く抑え可視光透過 率を増やすことによって、世界最大光量の11.6±0.4 p.e./keVee を達成した。この光量は QE が約 30%の PMT を用いる場合の最大検出光量であり、光収集効率を PMT の QE に よってのみ制限されるところまで改善することができたと考えている。

第6章では可視光領域で光子検出効率が高いTSV-MPPC Array 実装の R&D について 述べた。TSV-MPPC の LAr 極低温環境下での駆動を実証し、LAr 光の読み出しも行った。 また、Array タイプについても MPPC 接続回路を構築することにより、合計で 128 個の MPPC を LAr 環境下で駆動した。その結果、26.1±5.2 p.e./keVee という、従来の光量の 2 倍以上という大光量を得ることができた。

## 7.2 今後の展望

#### 7.2.1 高感度 LAr 検出器を用いた暗黒物質探索実験

今後,TSV-MPPC を実装した光収集光量が最大で 25 p.e./keVee 以上の検出器を構築 し,暗黒物質探索 Run を行う予定である。探索感度は標的物質の質量と,背景事象の削減 能力による。そこで,検出光量を向上させた際の発見感度を toyMC を用いて見積もった。

主要な BG である <sup>39</sup>Ar ER 背景事象は,信号領域である反跳エネルギーが数 10 keV で は 50 events/(kg × days × keVnr)存在する。これは LAr 中に含まれる放射性同位体のた め,大気から抽出する通常の LAr を用いる場合には波形弁別 (PSD) で解析的に除く。LAr 光の PSD=Slow/Total は図 2.8 に示すように ER 事象と NR 事象が分離し,その分離能力 は PSD の平均値と分散で決まる。そこで,データを再現できるモンテカルロシミュレー ションで分離能力を予想した。図 7.1 は ER 事象の PSD 分布で,それぞれ異なる光量 (5.7 p.e./keVee と 11.5 p.e./keVee) のデータ (黒プロット) と MC(水色ヒストグラム) を表す。 MC は 2 項分布 (slow or fast)+ガウス分布 (1 光子分解能) で構築しており, 10 keVnr 以 上のエネルギー領域でデータを再現できる。



図 7.1: PSD 分布の再現

この MC を用いて,本研究で TPB 蒸着技術の最適化により得られた 11.5 p.e./keVee と,TSV-MPPC を実装し得られた 25 p.e./keVee の検出器の PSD 能力を比較した。ただ し,MPPC については出力波形を今後改善するものとし,波形の崩れによる PSD の悪化 は考慮していない。横軸に反跳エネルギーをとった図 7.2 に,<sup>39</sup>Ar(黒実線) と 10 GeV/c<sup>2</sup>,  $10^{-40}$  cm<sup>2</sup>(赤破線) を仮定した WIMP のイベント数を示す。また,<sup>39</sup>Ar は上から順に,全 イベント数,PMT の 11.5 p.e./keVee の検出器の PSD cut, MPPC の 25 p.e./keVee の検 出器の PSD cut 後のイベント数に対応する。ただし,信号の取得効率が 15%になるよう に PSD cut している。図 7.2 から明らかなように,MPPC を用いることで既存の PMT を 用いた検出器よりも 10 keVnr での ER 分離能力を 100 倍程度改善できる。

次に, ER 背景事象が 0 イベントの環境で WIMP を探索することを考える。横軸に exposure をとった図 7.3 は <sup>39</sup>Ar のイベント数の期待値が 0.1 event になるように PSD cut 値を決め,その時の WIMP イベント数の期待値をプロットしている。50 kg × days 以上 の Run で 0ER 背景事象の探索実験ができる。





図 7.2: <sup>39</sup>Ar イベント数

図 7.3: WIMP イベント数の期待値

また,0BG 環境下で 50 kg × days の実験をし,WIMP のようなイベントがなかった場合には,図 7.4 に示す青実線まで棄却できる。4 × 4枚×2 面の TSV-MPPC Array は本研究の MPPC 接続でも 128 チャンネルの読み出しで実現できる。また,例えば 2 チャンネルを並列に接続すれば 64 チャンネルの読み出しに削減できる。これらは充分実現可能な読み出し数で,10 cm×10 cm×10(or20) cmの検出器 (LAr:約 1.4(or2.8) kg)を構築でき, 1~2 $\tau$ 月程度の Run を行うことで 50 kg × days を得られる。ANKOK 実験では既に LAr の 1 $\tau$ 月に渡る安定運用を確立しており,Run を 2,3 回に分けることで 1~2 $\tau$ 月の Run が可能である。



図 7.4: 期待される到達感度

検出器のサイズを大きくすることを考えたとき,式 3.1 のアクセプタンス A<sub>VUV</sub>, A<sub>VL</sub> が影響を受ける。この時,光量損失が起こる原因は「LAr 中の伝搬時の自己減衰」と「検 出器部材の境界面における損失」の 2 つが考えられる。LAr 中の伝搬時の自己減衰につ いては 5.4.3 節で議論したように,純度が高い LAr 中では減衰長が 100 cm よりも長いこ とから,10 cm 程度の検出器では影響しない。一方で,境界面における損失は,検出器形 状や境界面の部材により決まる。構築を予定する検出器は,本研究で構築したものの相似 形を予定しているため,光量損失の割合は変化しない。このような理由から,10 cm×10 cm×10(or20) cm の検出器でも,本研究と同程度の大光量 (25 p.e./keVee) を得られると考 えている。

一方で環境中性子などのNR 背景事象はPSD では除去できないため,水やポリエチレンブ ロックなどを用いたシールドにより減らす。早稲田地上では約100 events/(kg×day×keVnr) 程度の環境中性子が存在し,厚さ*T*の水シールドを置くことで「× exp(-*T*/10)」に低減で きると見積もっている。10 GeV/c<sup>2</sup>, 10<sup>-40</sup> cm<sup>2</sup> の WIMP を仮定し,PSD cut によって <sup>39</sup>Ar を低減することを考えた場合,図7.2の赤線で示すイベント数を期待できる。10~30 keVnr の範囲を信号領域とすると,WIMP 事象:約7×10<sup>-2</sup>,環境中性子:2×10<sup>3</sup> events/(kg×day) が期待される。0BG 探索を行うために中性子背景事象を WIMP 事象の 1/10 に低減する には、およそ3×10<sup>5</sup> のリダクションが必要になる。およそ *T* =130 cm の水シールドを構築することにより必要なリダクションを得ることができる。シールドの構築以外の方法では、宇宙線の影響が地上に比べて少ない地下に検出器を設置することによっても環境中性子を低減できる。

波形などの課題を解決した大光量 TSV-MPPC LAr 検出器を用いて, ER 事象と NR 事象ともに 0BG 環境の暗黒物質探索 Run を行う。

## 謝辞

この研究は多くの方に支えられ進めることができました。修士論文を書き終えるにあた り感謝を伝えさせていただきます。

まず,研究を行う機会を用意していただいた寄田浩平教授に感謝致します。先生には研 究のことだけではなく,物理をすることはどういうことかなど,人としての姿勢・立ち方 に至るまで多くの事を教えて頂きました。まだまだ未熟ではありますが,一つ一つを身に できるよう研鑽を積んでいきます。田中雅士准教授は研究を進める上で多くのアドバイス・ 議論をしていただきました。その中で,実験を進めるための考え方や気にすべき点などの ノウハウを少しずつでも学ばせていただきました。また,まささんとは2人で出張する機 会が何度かあり,おすすめの観光地に行った(行けませんでしたが)ことも思い出です。先 生,まささんの二人には特にご迷惑をお掛けしたにも関わらず,たくさんの話をして頂け たことに非常に感謝しております。

駒宮さんには学振や本論文を提出する際に多くのコメントを頂きました。また,研究室 内で発表をした後にも経験談を踏まえてアドバイスをいただきました。蛯名さんにはシス テム管理について大変お世話になりました。何かをやった,またはやらないで沢山の星を いただきましたが,焼肉おいしかったです。坂本さんには物品購入や出張の手続きなどで 大変お世話になりました。また,Run 中に唯一健康的な差し入れのスムージーやジュース は心身共に支えでした,ご馳走さまです。三谷さんが帰る前に研究の様子を聞いてくれる のは嬉しかったです。また,コーヒーの入れ方を教えて頂きおいしく淹れられるようにな りました。

ANKOKの先輩である鷲見さん,まさとさん,矢口さん,菊地さん,竹村さん,飯島さんにもお世話になりました。特に鷲見さんには蒸着装置を組み上げるときに多大なアドバイスを頂きました。また,矢口さんにはLArを安定運用するためのバルバーとしてのノウハウを教えていただきました。現在,ANKOK内で最上級生のまさとさんは一緒に実験をすると楽しく,また学ばせていただくことが沢山ありました。相談をしたときには真摯に向き合って頂きました。今後ともよろしくお願いします。

同期である植原君,武田君,鶴田君とは3年間ともに競いながら研究を進めてきました。 すぐ隣に3人が居たから頑張れた部分も多々あったように感じています。また,研究以外 のところでの会話も楽しかったです。ANKOKの後輩である小津君,諸星君,本田君とも 一緒に実験ができて良かったです。来年度からも,よろしくお願いします。

また、本研究で用いた実験機器は企業の方々のご協力を頂き準備できたものであり、大 変感謝しております。

最後に,健康・食事・精神面の全てにおいて支えていただいた家族に深く感謝致します。 皆様,ありがとうございました。

# 参考文献

- Giorgio Arcadi et al., "The waning of the WIMP? A review of models, searches, and constraints", Eur. Phys. J. C (2018) 78: 203
- [2] F. Tanedo., "Defense Against the Dark Arts- Notes on dark matter and particle physics", CreateSpace Independent Publishing Platform, 2015.
- [3] Fritz Zwicky, "Die Rotverschiebung von extragalaktischen Nebeln", Helvetica Physica Ac 6: 110-127, 19
- [4] K.G.Begeman et al, Mon. Not. R. astr. Soc. 249 (1991) 523-537
- [5] Clowe et al. "A Direct Empirical Proof of the Existence of Dark Matter," Astrophysic Journ 648 109 (2006)
- [6] Planck Collaboration., "Planck 2018 results. I. Overview and the cosmological legacy of Planck.", arXiv:1807.06205, 2018
- [7] Tarec Saab et al., Dark Matter Limit Plotter v5.13, https://www.slac.stanford. edu/exp/cdms/ScienceResults/LimitPlotter/Dark\_Matter\_limit\_plotter. html, 2020/01/20 閲覧
- [8] Ruppin et al., "Complementarity of dark matter detectors in light of the neutrino background", Physical Review D 90, p.083510-1 (2014)
- [9] Savage et al., "Compatibility of DAMA/LIBRA dark matter detection with other searches", Journal of Cosmology and Astroparticle Physics 4 p.10 (2009)
- [10] R.Agnese et al., "Search for low-mass dark matter with CDMSlite using a profile likelihood fit", Physical Review D 99.6 (2019)
- [11] CRESST Collaboration: A. H. Abdelhameed et al., "First results from the CRESST-III low-mass dark matter program", Phys. Rev. D 100, 102002 (2019)
- [12] The DarkSide Collaboration: P. Agnes et al., "DarkSide-50 532-day Dark Matter Search with Low-Radioactivity Argon", Phys. Rev. D 98, 102006 (2018)
- [13] The DarkSide Collaboration: P. Agnes et al., "Low-Mass Dark Matter Search with the DarkSide-50 Experiment", Phys. Rev. Lett. 121, 081307 (2018)
- [14] R. Ajaj et al. (DEAP Collaboration), "Search for dark matter with a 231-day exposure of liquid argon using DEAP-3600 at SNOLAB", Phys. Rev. D 100, 022004 (2019)
- [15] D. S. Akerib et al., "Results from a search for dark matter in the complete LUX exposure", Phys. Rev. Lett. 118, 021303 (2017)

- [16] E. Aprile et al., "Light Dark Matter Search with Ionization Signals in XENON1T", Phys. Rev. Lett. 123, 251801 (2019)
- [17] Aprile et al., "Dark Matter Search Results from a One Tonne×Year Exposure of XENON1T", Phys. Rev. Lett. 121, p.111302 (2018)
- [18] R.Agnese et al., "Projected Sensitivity of the SuperCDMS SNOLAB experiment", Phys. Rev. D 95, 082002 (2017)
- [19] Marc Schumann et al., "Dark matter sensitivity of multi-ton liquid xenon detectors", Journal of Cosmology and Astroparticle Physics ISSN 1475-7516; v.2015(10); p.016
- [20] C. E. Aalseth et al., "DarkSide-20k: A 20 Tonne Two-Phase LAr TPC for Direct Dark Matter Detection at LNGS", Eur. Phys. J. Plus (2018) 133: 131
- [21] E.Aprile,"Noble Gas Detector", (2006).
- [22] V. M. Gehman et al., "Fluorescence efficiency and visible re-emission spectrum of tetraphenyl butadiene films at extreme ultraviolet wavelengths", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Vol. 654, No. 1, pp. 116121, 2011.
- [23] T. Heindl et al., "The scintillation of liquid argon", Europhys. Lett. 91 62002 (2010)
- [24] T. Doke, K. Masuda and E. Shibamura, "Estimation of absolute photon yields in liquid argon and xenon for relativistic (1 MeV) electrons", Nucl. Instrum. Meth. A 291, 617 (1990).
- [25] M.Kimura et al., "Measurement of the scintillation efficiency for nuclear recoils in liquid argon under electric fields up to 3 kV/cm", Phys. Rev. D 100, 032002 (2019)
- [26] Akira Hitachi and Tan Takahashi, "Effect of ionization density on the time dependence of luminescence from liquid argon and xenon", Phys Rev B, vol27, No. 9, (1983)
- [27] 月出章(日本放射線化学会編),「希ガス液体の放射線効果」,放射線化学 2013 No.96, http://www.radiation-chemistry.org/kaishi/096pdf/96\_45.pdf, 2020/01/20 閲覧
- [28] M. Szydagis et al. NEST, "a comprehensive model for scintillation yield in liquid xenon", Journal of Instrumentation, Vol. 6, No. 10, p. P10002, 2011.
- [29] P. Agnes et al., "Measurement of the liquid argon energy response to nuclear and electronic recoils", arXiv:1801.06653, 2018.
- [30] 鷲見貴生,"暗黒物質探索のための気液2相型アルゴン検出器における電子反跳背景事 象除去能力に関する研究",博士論文(2018年度,早稲田大学)

- [31] R.Acciarriet al., "Oxygen contamination in liquid Argon: combined effects on ionization electron charge and scintillation light", JINST 5 (2010)
- [32] R.Acciarriet al., "Effects of Nitrogen contamination in liquid Argo", JINST 5 (200)
- [33] 寄田浩平 他, "気液2相型アルゴン光検出器による暗黒物質探索実験 (ANKOK)", 高 エネルギーニュース 30-4 108 (2018)
- [34] Chloe Ransom, "Studies of a PMT with magnesium fluoride window for direct detection of liquid argon scintillation light", Joint SPS and OePG meeting 2017 25
- [35] T. Igarashi, M. Tanaka, T. Washimi and K. Yorita, "Performance of VUV-sensitive MPPC for liquid argon scintillation light", Nucl. Instrum. Meth. A 833, 239 (2016)
- [36] B. Broerman et al., "Application of the TPB Wavelength Shifter to the DEAP-3600 Spherical Acrylic Vessel Inner Surface," JINST 12, no. 04, P04017 (2017)
- [37] 鷲見貴生,"ANKOK 実験における大光量 2 相型プロトタイプ検出器の開発と性能評価",修士論文 (2014 年度,早稲田大学)
- [38] P. Benetti et.al., "Measurement of the specific activity of 39Ar in natural argo", NIM 574 (2007) 83
- [39] 中新平, "ANKOK 地上実験テストスタンドの構築及び環境 γ 線の低減", 修士論文 (2016 年度, 早稲田学)
- [40] Emily Grace et al., "Index of refraction, Rayleigh scattering length, and Sellmeier coefficients in solid and liquid argon and xenon", arXiv:1502.04213, 2015
- [41] N. Ishida et al., "Attenuation length measurements of scintillation light in liquid rare gases and their mixtures using an improved reflection suppresser", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 384, p.380-386, 1997
- [42] J.Calvo et al., "Measurement of the attenuation length of argon scintillation light in the ArDM LAr TPC", Prepared for submission to JCAP. arXiv:1611.02481v1.
- [43] A. Neumeier et al., "Attenuation of vacuum ultraviolet light in pure and xenondoped liquid argon - an approach to an assignment of the near-infrared emission from the mixture", EPL (2015). arXiv:1511.07725.
- [44] 矢口徹磨,"波長変換材 TPB 蒸着された反射材の光学特性測定と理解", 学士論文 (2015 年度, 早稲田学)
- [45] 鈴木優飛, "神岡地下実験室における液体シンチレータを用いた環境中性子測定", 修 士論文 (2016 年度, 早稲田大学)
- [46] C. P. Benson et al., "Measurements of the intrinsic quantum efficiency and absorption length of tetraphenyl butadiene thin films in the vacuum ultraviolet regime", Eur. Phys. J. C (2018) 78: 329

- [47] R. Francini et al., "VUV-Vis optical characterization of Tetraphenyl-butadiene films on glass and specular reflector substrates from room to liquid Argon temperature", Journal of Instrumentation, Vol. 8, No. 09, p. P09006, 2013.
- [48] S. M. Hanagodimath et al, "Fluorescence-quenching studies and temperature dependence of fluorescence quantum yield, decay time and intersystem crossing activation energy of TPB", Journal of Luminescence, Vol. 129, No. 4, pp. 335339, 2009.
- [49] R. Jerry et al., "A study of the Fluorescence Response of Tetraphenyl-butadiene", arXiv:1001.4214, 2010.
- [50] Tamadevice.co.ltd., "QCM-水晶発振子マイクロバランス (Quarts Crystal Microbalance)", http://www.tamadevice.co.jp/9m-set.htm, 2020/01/20 閲覧
- [51] 日本アイソトープ協会 (編), "アイソトープ手帳", 丸善 (2002)。
- [52] V. C. Rogers, "Inelastic neutron scattering in <sup>19</sup>F", Phys. Rev. C 9, 527
- [53] T. Alexander et al., "Light Yield in DarkSide-10: A Prototype Two-Phase Argon TPC for Dark Matter Searches", Astropart. Phys. 49, 44 (2013)
- [54] P. Agnes et al., "First results from the DarkSide-50 dark matter experiment at Laboratori Nazionali del Gran Sasso", Physics Letters B 743, 456 (2015)
- [55] P.-A. Amaudruz et al. (DEAP-3600 Collaboration), "First Results from the DEAP-3600 Dark Matter Search with Argon at SNOLAB", Phys. Rev. Lett. 121, 071801
- [56] J.T.M. de Haas and P. Dorenbos, "Methods for Accurate Measurement of the Response of Photomultiplier Tubes and Intensity of Light Pulses", IEEE Transactions on Nuclear Science, 58 (2011), pp. 1290-1296
- [57] 木村公彦, "MPPC を利用したアルゴン発光成分の定量的評価と暗黒物質探索への応用", 卒業論文 (2013 年度, 早稲田大学)
- [58] Max Renschler et al., "Characterization of Hamamatsu 64-channel TSV SiPMs", NIM A volume 888 257-267
- [59] 浜松ホトニクス、"S13361-6050 series スペックシート", D. Renker and E. Lorenz. Advances in solid state photon detectors. JINST, 4:P04004, 2009.https:// www.hamamatsu.com/resources/pdf/ssd/s13361-6050\_series\_kapd1056e.pdf, 2020/01/20 閲覧
- [60] 青山一天, "ANKOK 本実験に向けた LAr 蛍光の直接及び間接検出手法の研究", 卒業 論文 (2017 年度, 早稲田大学)
- [61] T. Doke and K. Masuda., "Present status of liquid rare gas scintillation detectors and their new application to gamma-ray calorimeters", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, Vol. 420, No. 1-2, pp. 6280, 1999.

- [62] K.Ieki et al., "Large-area MPPC with enhanced VUV sensitivity for liquid xenon scintillation detector", Nucl. Instrum. Meth. A 925, 148 (2019)
- [63] 小川真治, "MEG II 実験のための真空紫外光に感度のある大型 MPPC を用いた高精 細読出し液体キセノンガンマ線検出器の開発", 修士論文 (2015 年度,東京大学)