修士論文

液体シンチレータ検出器の低バックグラウンド化による環境中性子測定感度向上

2021/2/6

早稲田大学 先進理工学研究科 物理学及応用物理学専攻
寄田研究室

5319A016-2 小津龍吉

概要

暗黒物質は電磁相互作用をしないが質量を持つ粒子である。宇宙の全エネルギーの 27% を占め、その存在は銀河の回転曲線問題や大規模構造形成といった宇宙論的観測結果から示唆されている。暗黒物質の有力な候補に WIMPs（弱く相互作用する GeV-TeV 程度の質量を持った粒子）がある。探索手法には 3 つあり、1 つに暗黒物質が既知の物質を反跳したときのエネルギーを観測する暗黒物質直接探索実験がある。

環境中性子は原子核反跳事象を起こし、直接探索実験における信号事象と区別することが出来ない。環境中性子の生成起因は宇宙線と岩盤の 2 つに分けられる。二次宇宙線としての中性子やミューオンの原子核破砕により生成されるものは宇宙線に起因する。放射性核種の自発核分裂や（α,n）反応で生成されるものは岩盤に起因する。この内、ミューオンの原子核破砕は Z（原子番号）が大きいほどより多くの中性子を生成するため、γ線の侵入を防ぐ目的で検出器周辺にシールド部材（鉛など）がある場合、生成中性子の影響を無視することが出来ない。従って対策（シールド、veto、理解）が必要である。

本研究では、中性子測定に粒子種毎の dE/dx が優れており γ線と中性子を効果的に弁別することが出来るキシレンベースの液体シンチレータ（液シン）、BC-501A（Saint-Gobain 社製）を用いている。宇宙線起因の中性子は、4 章「Run20.1 で観測された NR 背景事象の検証」で記す。背景事象の起因として鉛と宇宙線ミューオンの相互作用が疑われたため、液シンを鉛で覆い積極的に相互作用起因の中性子を取得した。岩盤起因の中性子に関する内容は 5 章「神岡地下環境中性子測定に向けた低 BG 検出器の構築」で記す。地下環境では中性子は地上の 1000 分の 1 程度になることが高エネルギー側ではわかっている。低エネルギー側においては、検出器部材由来の α 線が主要な BG となり中性子を測定することが出来ない。そのため、一から低 BG な検出器を作製した。その後、さらに BG 源と考えれる部材を特定し改良を続けた。本検出器で得られる中性子感度を報告する。6 章では、4 章、5 章で得られた知見を基に包括的に考察を行った結果を報告する。

目 次

1 序論 **1**
1.1 暗黒物質探索の動機 . . . 1
1.2 探索手法 . . . 2
1.2.1 ANKOK 実験 . . . 2

2 環境中性子 **4**
2.1 環境中性子の生成起因 . . . 4
2.2 中性子エネルギーと反跳原子核のエネルギー . . . 9
2.3 測定現状 . . . 10
2.4 本論文の展開 . . . 11

3 液体シンチレータ **12**
3.1 物性値 . . . 12
3.2 キャリブレーション手法 . . . 12
3.3 元の中性子エネルギーの再構成法 . . . 14

4 Run20.1 で観測された原子核反跳背景事象の検証 **15**
4.1 Run20.1 結果 . . . 15
4.2 検証のためのセットアップ . . . 16
4.3 解析 . . . 18

5 神岡地下環境中性子測定に向けた低バックグラウンド検出器の構築 **21**
5.1 地下環境についての一般的な説明 . . . 21
5.2 旧液体シンチレータ検出器による以前の Study . . . 21
5.3 新低 BG 検出器の特徴 . . . 23
5.3.1 電解研磨 . . . 23
5.3.2 純化 . . . 23
5.4 セットアップ . . . 25
5.5 解析 . . . 26
5.5.1 評価法 . . . 26
5.5.2 時間変化と考察 . . . 27
5.5.3 L-R Asymmetry 分布による α 線源の推定 . . . 28
5.6 新低バックグラウンド検出器の改良 . . . 30
5.6.1 検出器窓面部材の交換 . . . 30
5.6.2 超音波洗浄 . . . 31
5.6.3 外気に触れない純化系の構築 . . . 31
5.7 α 線の再評価 . . . 32
5.7.1 時間変化 . . . 32
5.7.2 L-R Asymmetry 分布の変化 . . . 33
5.7.3 中性子に対する感度 . . . 34

6 考察 **36**
6.1 地上環境中性子の包括的な理解 . . . 36

7 まとめと展望 **40**

8 謝辞 **41**

A 複合電解研磨を施した次代の液体シンチレータ検出器容器 **42**

図 目 次

1.1 典型的な渦巻き銀河の中心からの半径の関数としての回転曲線の模式図。点線がケプラーの法則による予測曲線。実線が観測値。 1
1.2 暗黒物質探索手法 2
1.3 気液二相型アルゴン検出器（左図）と信号の概念図（右図） 2
1.4 ANKOK 実験 Run20.1 の configuration 3
2.1 エネルギーによる中性子の分類 4
2.2 一次宇宙線による中性子生成過程 [14] 4
2.3 中性子と X 線の質量減衰係数 [21] 5
2.4 原子核破砕（上）と電磁カスケード中の光子による光核反応（下） 5
2.5 μ エネルギー 280GeV での原子量と中性子生成量の関係 [16] 6
2.6 世界の実験サイトにおける μ フラックス [15] 7
2.7 実験サイトの深さごとに液体シンチレータが感じるミューオン spllation 由来の中性子生成量 [23] 7
2.8 ポリエチレンに宇宙線 μ を照射したときのエネルギーと中性子生成量の関係 . . . 7
2.9 MINOS 実験で観測された宇宙線ミューオンの季節変動（左）と大気温度の変動 (右) [34] 8
2.10 Th 系列 9
2.11 U 系列 9
2.12 実験室系での弾性散乱 9
2.13 ^{3}He 比例計数管の測定と Geant4 を組み合わせて推定された中性子スペクトラム [13] 11
3.1 コンプトン散乱 13
3.2 コンプトンエッジ（unbroadened,broadened） 13
3.3 Back Scatter 法の概念図 13
4.1 ANKOK 実験 Run20.1 で観測された原子核反跳事象スペクトラム 15
4.2 使用する液体シンチレータ 16
4.3 液シンと PMT のアッセンブリ 16
4.4 液シンと鉛の位置 17
4.5 鉛とプラスチックシンチレータの位置 17
4.6 生波形 17
4.7 ピーク値からペデスタルを引いた分布 18
4.8 PSD 分布と光量分布 19
4.9 Slow/Total 分布 19
4.10 中性子スペクトラム 20
5.1 旧検出器で観測された PSD 分布 21
5.2 旧検出器で得られた中性子スペクトラムと α 線スペクトラム 22
5.3 Po-214 のタグ方法 22
5.4 電解研磨した内面の写真 23
5.5 純化セットアップ 24
5.6 低バックグラウンド検出器（左は遮光のためにブラックシートを巻いたもの、右はそれを外したもの 25
5.7 シールド（左は積み終わったシールド、右はおおよそ銅の高さまで崩したシールド） 25
5.8 DAQ setup 26
5.9 PSD 分布 27

5.10 dt<1ms を要求した PSD 分布 27
5.11 1285keV の γ 線に対する α 線の光量比 27
5.12 Po-214,Po-218,Rn-222 27
5.13 Po-214α 線の時間変化 28
5.14 Cs-137 を用いた Back Scatter 法によるポジションスキャン 28
5.15 検出器位置と L-R Asymmetry 28
5.16 L-R Asymmetry と検出器光量の関係 28
5.17 1 か月後の Po-214,Po-218,Rn-222（左から Po-214,Po-218,Rn-222） 29
5.18 1 か月後の L-R Asymmetry 分布 29
5.19 L-R Asymmetry の σ 30
5.20 3 か月後の α 線が主要な領域の光量分布 30
5.21 3 か月後の L-R Asymmetry 分布 30
5.22 L-R Asymmetry から Detector Position への変換 30
5.23 検出器内の発光位置（Detector Position) 30
5.24 超音波洗浄 31
5.25 配管図 31
5.26 低バックグラウンド検出器改良後の初期 8 時間分の PSD 分布 32
5.27 低バックグラウンド検出器改良後の 1 か月経過時の 1 日分の PSD 分布 32
5.28 低バックグラウンド検出器改良後の α 線レートの時間変化 33
5.29 Detector Position と L-R Asymmetry の関係 33
5.30 Detector Position と L-R Asymmetry の σ の関係 33
5.31 L-R Asymmetry と光量の関係 33
5.32 低バックグラウンド検出器改良後の光量分布 34
5.33 低バックグラウンド検出器改良後の L-R Asymmetry 分布 34
5.34 低バックグラウンド検出器改良後の Detector Position 分布 34
5.35 石英窓交換前との比較 34
5.36 期待される環境中性子スペクトラムと初期レートから算出される α 線光量分布 . . 35
6.1 セットアップ（上） 36
6.2 セットアップ（横） 36
6.3 補正前の detected time 37
6.4 補正後の detected time 時間差は+4ns 以内に収まっている 37
6.5 液体シンチレータ検出器（左上）とプラスチックシンチレータの fluctuation of L.Y. 37
6.6 3.48 日間取得した液体シンチレータの PSD 分布, 赤枠は clear Nuclear Recoil Event . 38
6.7 3.48 日間取得した全 Δ t 分布 38
6.8 全 clear nuclear recoil event 38
6.9 (-0.2,+0.5)(us) で拡大した clear nuclear recoil event 38
6.10 鉛を貫通する事象のタグ方法 39
6.11 clear nuclear recoil event の内、鉛を貫通する事象 39
A.1 80L Rn 検出器の図 [49] 42
A.2 次代の液体シンチレータ検出器（ダクト部） 43
A.3 検出器容器フランジ部ポンチ絵 43
A.4 左から、検出器中心に線源を設置したとき、検出器位置 vs L-R Asymmetry、L-R Asymmetry vs 光量、全位置依存性データを pol2 で fit した関数で補正した光量分布 44
A.5 (左) 純化数時間後の分布、(右) 純化から約 9 日経過後の分布 44
A.6 (左) 純化数時間後の分布、(右) 純化から約 9 日経過後の分布 44

A.7 α 線レートの変化 45

表 目 次

2.1 20 m.w.e. における spallation で生成される中性子の内訳 6
2.2 自発核分裂する核種の Watt Parameter 8
2.3 大陸地域の地殻における元素存在度 (ppm) 上位 5 種 9
2.4 中性子測定の先行研究 10
3.1 BC-501A の諸特性 [2] 12
4.1 Run20.1 で観測された中性子の起因 15
4.2 変数の定義 18
5.1 解析に用いる変数と定義 26
6.1 変数の定義 36

1 序論

1.1 暗黒物質探索の動機

暗黒物質は電磁相互作用をしないが質量を持つ粒子である。宇宙の全エネルギーの 27% を占め、その存在は銀河の回転曲線問題や大規模構造形成といった宇宙論的観測結果から示唆されている。

既に 1933 年に Zwicky[41] は、かみのけ座銀河団の速度分布からダークマターの存在を提唱している。理屈としては、「銀河の明るさを質量に換算したところ、銀河団には光る物質よりもはるかに多くの暗黒な物質があることから、それを説明するために暗黒物質を考えた。」ということである。ビリアル定理を用いて見える銀河の速度分散から導出される重力では、銀河団の結合を維持するには十分ではなかった。つまり、発光する物質では観測されたダイナミクスが説明されなかったのである。

暗黒物質の証拠として有名な銀河の回転曲線問題であるが、地球がある天の川銀河やアンドロメダ銀河は、渦巻き銀河である。円盤の軌道速度をスペクトル線の赤方偏移から測定すると、中心からの半径の関数として回転曲線（軌道速度）を求めることが出来る。これとケプラーの第三法則から求められる回転曲線を重ね描くと、説明できないことが分かっており、暗黒物質の存在を示す。G_N はニュートンの重力定数。M は銀河の中心質量。

$$v_{rot}(r) = \sqrt{\frac{G_N M}{r}} \tag{1.1}$$

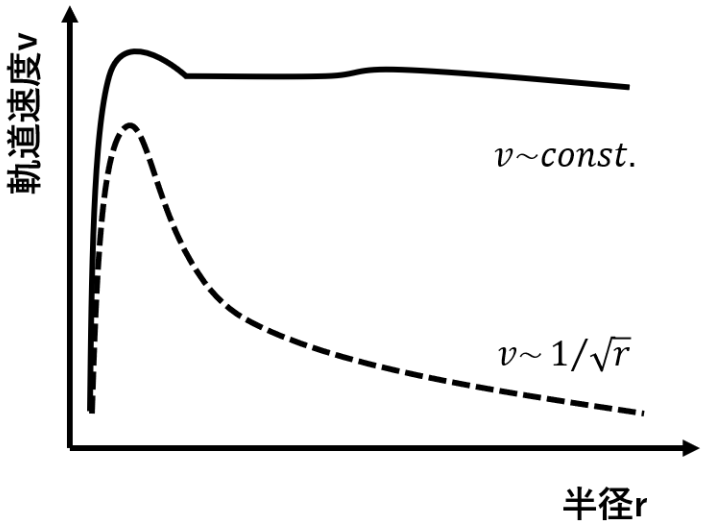

図 1.1: 典型的な渦巻き銀河の中心からの半径の関数としての回転曲線の模式図。点線がケプラーの法則による予測曲線。実線が観測値。

その存在は示唆されるが、性質は分かっておらず一つの粒子なのかそれとも複数の種類存在するのかといったことも分かっていない。標準模型に含まれない粒子であることから、暗黒物質を探すことは素粒子物理学における重要な課題の 1 つである。暗黒物質の有力な候補に WIMPs（弱く相互作用する GeV - TeV 程度の質量を持った粒子）がある。

1.2　探索手法

暗黒物質を探索する手法には原則として直接検出法、間接検出法、加速器生成の 3 つの方法がある。

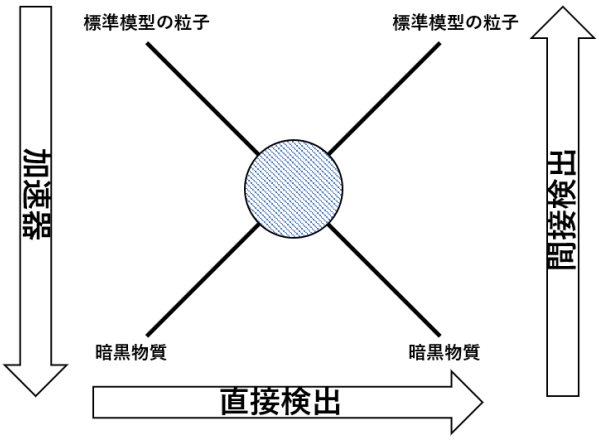

図 1.2: 暗黒物質探索手法

直接検出実験は、暗黒物質粒子が実際に検出器を通過して物理的に相互作用することに依存しており、間接検出実験は、暗黒物質粒子が他の場所で消滅して生成された二次粒子を検出しようとしている。加速器生成実験は高エネルギー粒子を衝突させて生成された粒子の中から暗黒物質を探す手法である。銀河に暗黒物質が存在することを示す証拠があるにも関わらず、直接検出することは重要である。そのために、適切な標的の原子核との弾性衝突が研究されている。最も一般的には局所密度 $\rho_0 = 0.3GeV/cm^3$ とマクスウェルボルツマン速度分布 $v_0 = 270km/s$ で暗黒物質の質量を 10-100GeV とすると、弾性衝突で標的原子核には 1-100keV の範囲でエネルギーが与えられる。

1.2.1　ANKOK 実験

ANKOK 実験は早稲田大学で行われている気液二相型アルゴン検出器を用いた暗黒物質直接探索実験であり質量 10GeV の WIMP を $10^{-40}cm^2$ 以下まで探索することを目標としている。

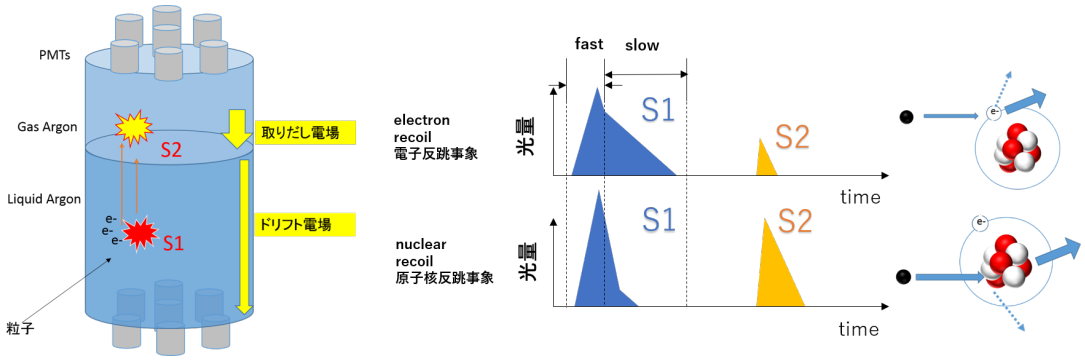

図 1.3: 気液二相型アルゴン検出器（左図）と信号の概念図（右図）

液相部分に入射した粒子がアルゴン原子と衝突することでシンチレーション光（一次蛍光、S1）及び電離電子を発生させる。検出器容器には電場が印可されており電離電子が液相から気相に取り

出されると気体のアルゴンを電離させて蛍光（二次蛍光、S2）を生じる。S1 の信号波形と、S1/S2 の信号比は電子反跳事象（ER）と原子核反跳事象（NR）の場合では異なる。これを用いることで電子反跳事象は取り除くことが出来る。また、S1 と S2 の発光時間差を用いることで鉛直方向の発光位置が特定でき、S2 の波形の形状から水平方向の発光位置が再構成できる。これにより、多重散乱事象（WIMP は何度も散乱しない）や容器表面の背景事象を除去することが可能である。2020 年 8 月には ANKOK 実験 Run20.1 を行った。但し、今までの ANKOK 実験の歴史から液体アルゴン一相式実験の方が光量が得られることが分かっており、本年度は ϕ6.2 cm×Length 5 cm の Fiducial Volume(0.22kg) を持った検出器を作製、暗黒物質直接探索を行った。

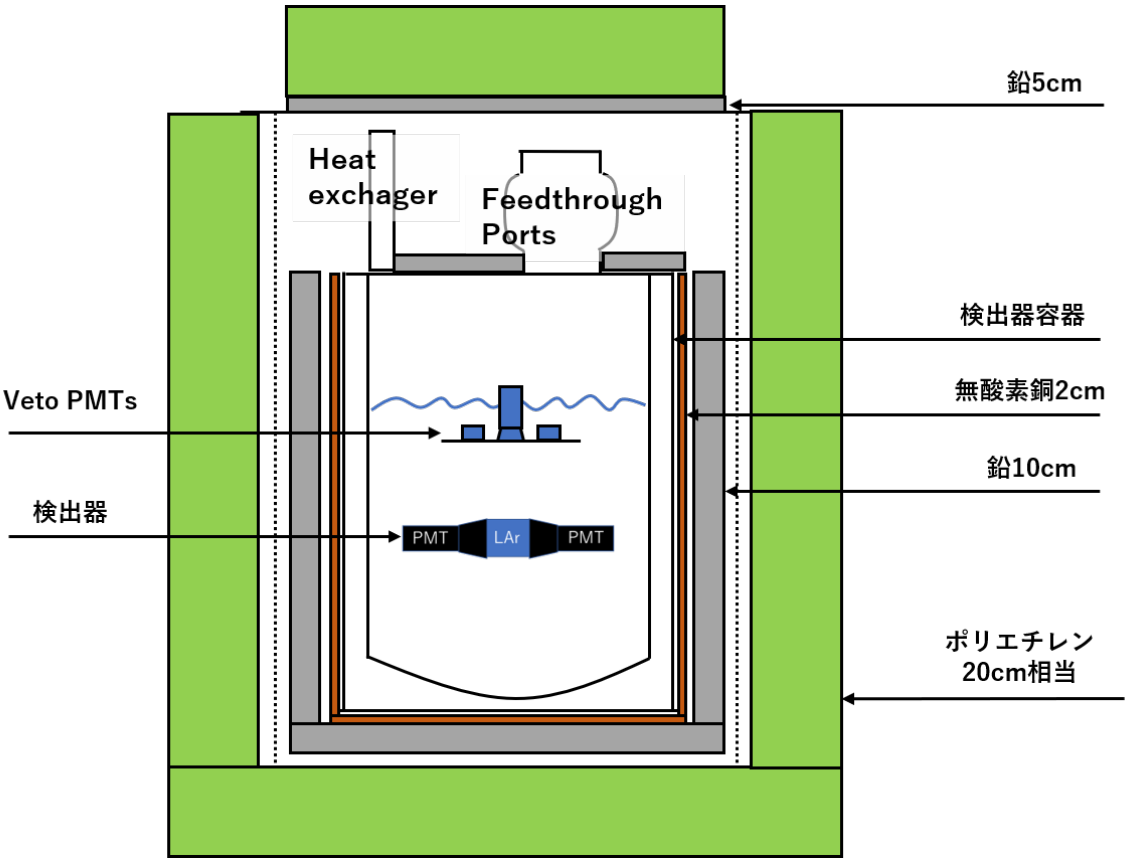

図 1.4: ANKOK 実験 Run20.1 の configuration

2　環境中性子

環境中性子は暗黒物質直接探索実験やニュートリノを伴わない二重 β 崩壊探索実験において主要な背景事象となる。環境中性子のエネルギーは実に 9 桁に及ぶが、本章では暗黒物質直接探索実験において主要な背景事象となる sub MeV から MeV 領域の環境中性子に主眼をおいて議論を進める。

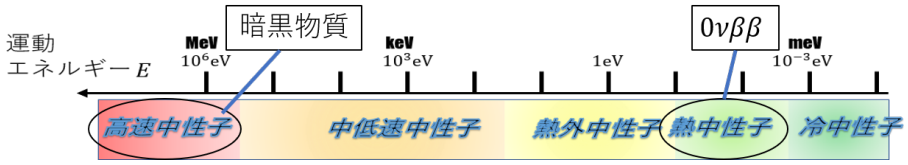

図 2.1: エネルギーによる中性子の分類

2.1　環境中性子の生成起因

環境中性子は宇宙線起因と岩盤起因の中性子の 2 つで説明が出来る。宇宙線起因の環境中性子には、大気上空で一次宇宙線が原子核を破砕することで生成される二次宇宙線中性子と、宇宙線ミューオンの原子核破砕、電磁カスケード中の光子による反応、核カスケード中のハドロンによる反応、原子核捕獲で生成される中性子があることが知られている。[19][20]

二次宇宙線中性子は以下の図の通り、一次宇宙線が上空で大気原子核を破砕したときに生成される。生成された中性子は地上環境中性子の主要な成分となる。

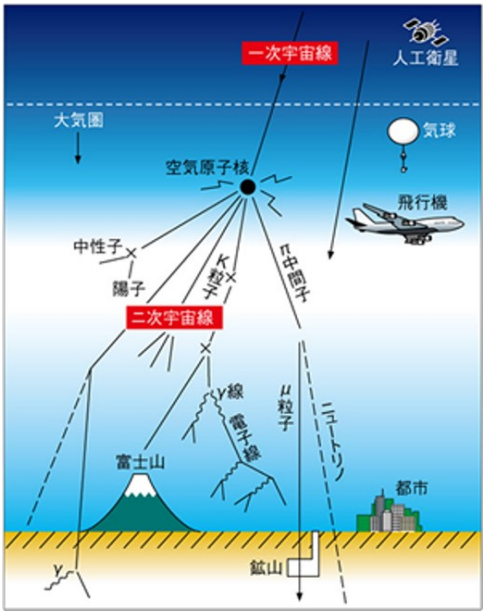

図 2.2: 一次宇宙線による中性子生成過程 [14]

二次宇宙線の中性子は水素が豊富に含まれる物質と散乱することでエネルギーを失っていく。例えば岩石やコンクリートといったものにも水分は数 % 含まれているため、それらに囲まれた環境では影響が減少する。中性子は原子核と相互作用をするため、原子ごとに散乱・吸収する確率

は異なるが、水素は有力に強度を低下させる。これは

$$I = I_0 e^{-\mu x \rho} \tag{2.1}$$

に従う。μ は質量減弱定数、x は通過距離。ρ は物質の密度。

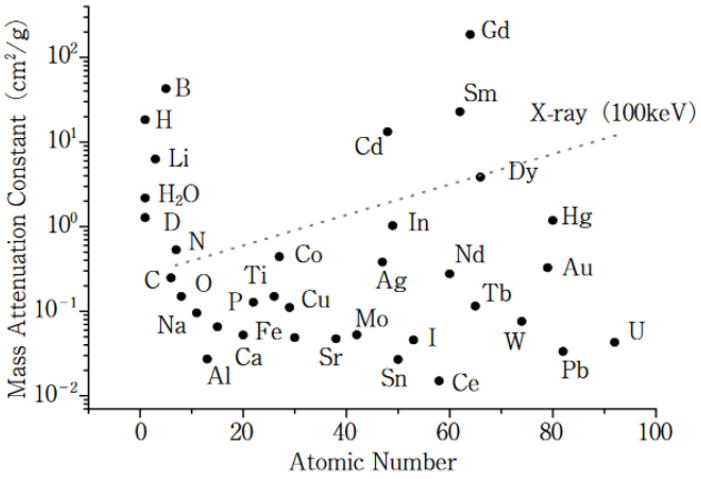

図 2.3: 中性子と X 線の質量減衰係数 [21]

一般に地下に行くに連れ岩盤に遮蔽されるため影響は減少していく。

一般的にミューオンは中性子より透過力が高い。そのため地表深くまでたどりつき、そこで中性子を生成する。宇宙線ミューオン起因で作られる中性子は spallation（原子核破砕、電磁カスケード中の光子による反応、核カスケード中のハドロンによる反応）と capture（原子核捕獲）に分けられる。この内、原子核捕獲は浅い階層（100 m.w.e.）まで有効である。[20] なお、16 m.w.e. であればミューオンの平均エネルギーは 7GeV である。[22]

$$\mu^- + p \to n + \nu_\mu \tag{2.2}$$

100 m.w.e 以降は、spallation 起因が主となる。spallation は原子核破砕、電磁カスケード中の光子による反応、核カスケード中のハドロンによる反応で説明ができる。

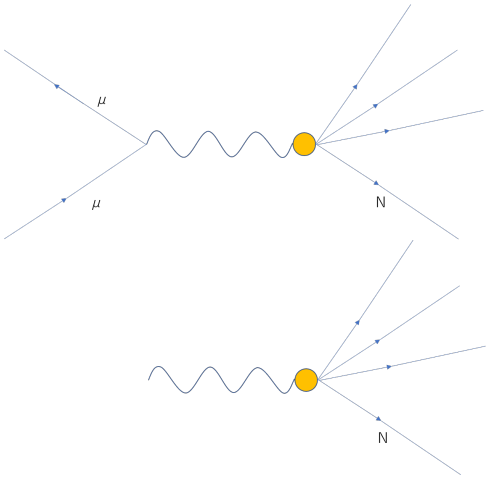

図 2.4: 原子核破砕（上）と電磁カスケード中の光子による光核反応（下）

spallation は、single neutron だけでなく、double neutron、π^+、π^+ を伴う中性子を生成する。[23] 液体シンチレータをハドロン生成のターゲットマテリアルとした 20 m.w.e. での測定では

表 2.1: 20 m.w.e. における spallation で生成される中性子の内訳

single neutron	$(4.3\pm0.3\pm0.8)\times10^{-5}$ neutrons per muon g/cm^2
double neutron	$(1.6\pm0.2\pm0.5)\times10^{-5}$ neutrons per muon g/cm^2
π^+	$(3.5\pm0.2\pm0.7)\times10^{-6}$ pions per muon g/cm^2
The nonshowering muon π^+ production probability	2.5×10^{-5} pions per muon g/cm^2

となる。液体シンチレータ内部ではミューオンにより double neutron は single neutron の 1/3 程度生成される。π^+ はそれより 1 桁低い程度生成されるが、π^+ はほぼ全て中性子を伴っていると測定されている。シャワーを伴わずミューオンが π^+ を生成する場合は、その半分が中性子を伴うと測定されている。ちなみに、同じエネルギーのミューオンであっても原子量が大きい方が中性子生成量は多くなることには注意が必要である。例えば、ミューオンエネルギーが 280GeV のときには、ポリエチレンと鉛で中性子生成量は 1 桁異なる。[16]

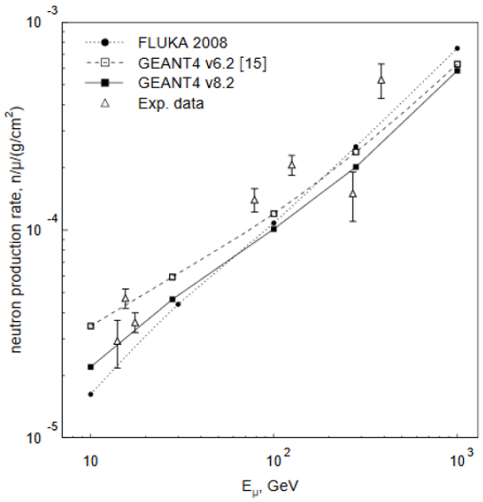

図 2.5: μ エネルギー 280GeV での原子量と中性子生成量の関係 [16]

さて、宇宙線ミューオンは透過力が高いといったが、m.w.e. が大きくなるにつれてやはり遮蔽されていく。次のプロットは世界のミューオンフラックスをプロットしたものだが、岐阜県飛騨市神岡町東茂住にある神岡宇宙素粒子研究施設は 2,700 m.w.e. にあり地上の 10 万分の 1 のフラックスになっている。[15]

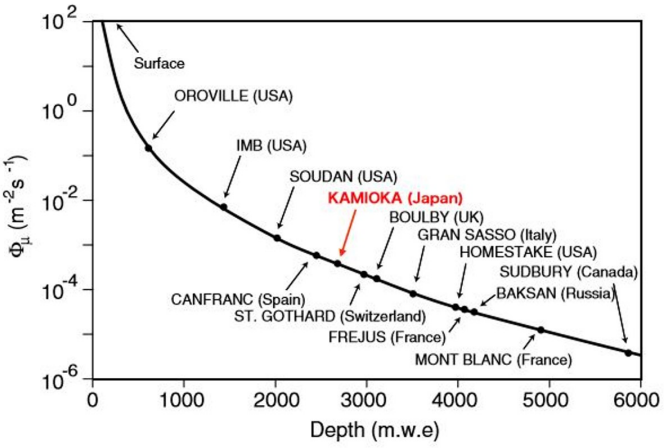

図 2.6: 世界の実験サイトにおける μ フラックス [15]

今までの測定では、2,700 m.w.e. では環境中性子量は地上に比べて約 1000 分の 1 である。このうちミューオンが与える寄与は多くとも 1% 程度と見積もられている。[13] ちなみに、地下に行くほどミューオン 1 つが物質と spallation を起こしたときの中性子生成量は大きい。[23] これは、ミューオンのエネルギーが大きいほど中性子生成量が多いこと [16] と、地下に行くほどミューオンの平均エネルギーが高い話で説明できる。実際に、16 m.w.e.（Tübingen Shallow Underground Laboratory）では平均ミューオンエネルギーは 7GeV であるが、[22]、2805 m.w.e.(Boulby underground laboratory) では 280GeV であり、[16]4800 m.w.e. では 300GeV（Laboratoire Souterrain de Modane) である。[19]

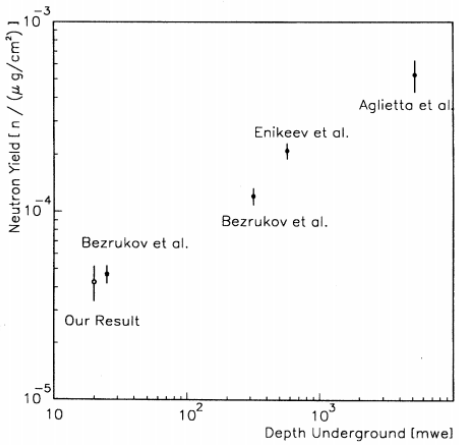

図 2.7: 実験サイトの深さごとに液体シンチレータが感じるミューオン spllation 由来の中性子生成量 [23]

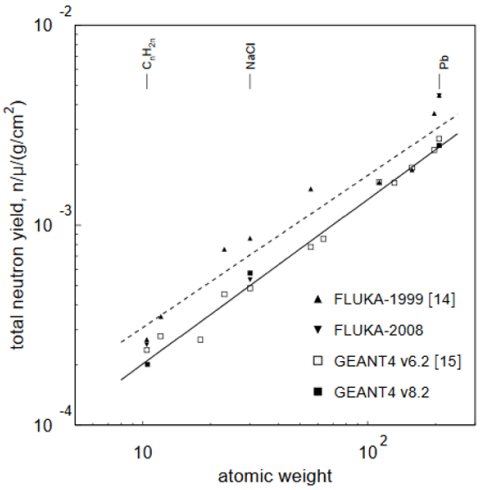

図 2.8: ポリエチレンに宇宙線 μ を照射したときのエネルギーと中性子生成量の関係

なお、ミューオンは季節変動するため、生成される中性子にも季節変動が生じる。暗黒物質直接探索実験において、季節変動を観測した場合それがミューオンの寄与かどうか確かめることは非常に大切である。一例を挙げると長基線ニュートリノ振動実験 MINOS 実験 (Soudab Lab, Underground) では 5 年を通して peak to peak で 4% のミューオンの季節変動を観測しており、夏の方がレートが高いことを示している。[34] 対流圏の温度は、1 日の間でかなり変動するが、成層圏の温度は季

節単位でないと変わらない（但し、突然の成層圏の温暖化を除いて [42]）。成層圏の温度が変化すると、密度が低下し、その結果中間子との相互作用の機会が減り、ミューオンを生成するために崩壊する割合が多くなることがミューオンレート変動の理由である。

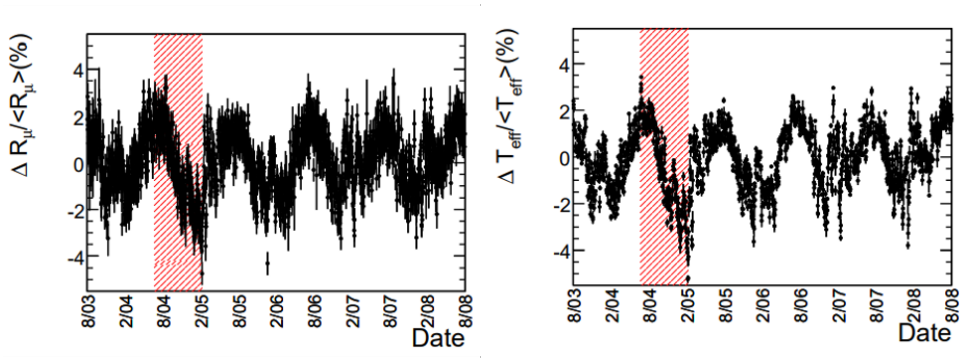

図 2.9: MINOS 実験で観測された宇宙線ミューオンの季節変動（左）と大気温度の変動 (右）[34]

さて、宇宙線起因の中性子が減少した結果、地下では岩盤起因の環境中性子が優勢である。岩盤起因の中性子は放射性不純物由来（U/Th 系列の自発核分裂や（α,n））反応である。自発核分裂は核分裂片に伴って何個かの高速中性子を放出するものである。核分裂及び自発核分裂で生成される中性子のスペクトラムは Watt Spectrum[54] に従う。

$$\begin{aligned} W(a,b,E') &= Ce^{-aE'}sinh(\sqrt{bE'}) \\ \text{where C} &= \sqrt{\pi\frac{b}{4a}}\frac{e^{\frac{b}{4a}}}{a}, \text{ and } E' \text{ is the secondary neutron Energy} \end{aligned} \tag{2.3}$$

表 2.2: 自発核分裂する核種の Watt Parameter

isotope	a[MeV^{-1}]	b[MeV^{-1}]
^{232}Th	1.25	4.0
^{234}U	1.29661	4.92449
^{238}U	1.54245	6.81057
^{252}Cf	0.847458	1.03419

自発核分裂により生成される中性子のエネルギーと、（α,n）反応により生成される中性子のエネルギーはどちらも 1MeV 程度にピークを持つことが知られている。[13] なお、U/Th 系列のうち、自発核分裂を起こす核種は U-238,U-234,Th-230（U 系列）と Th-232（Th 系列）のみである。[35]

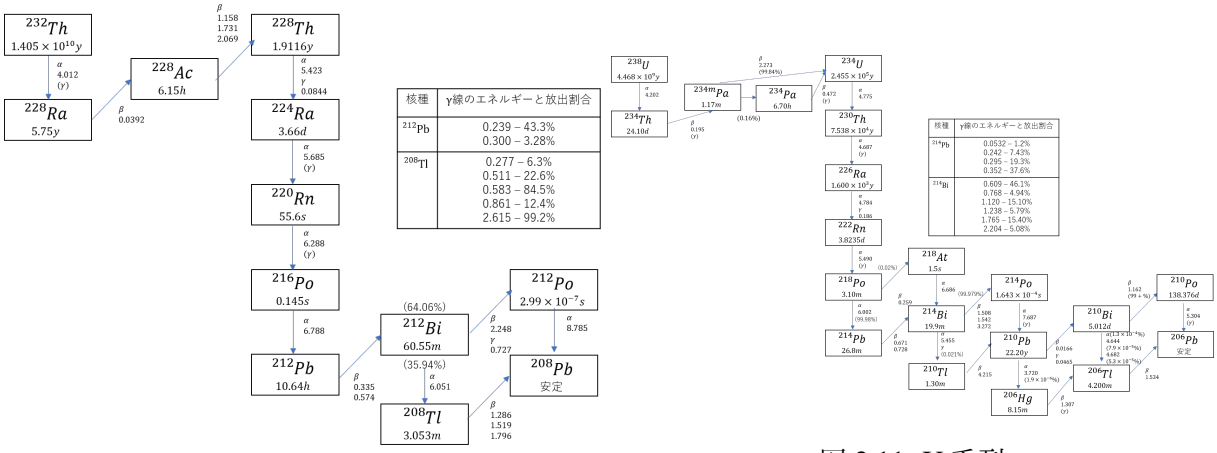

図 2.10: Th 系列

図 2.11: U 系列

（α,n）反応は核反応の一種である。岩盤から放出される U/Th 系列の α 線が岩盤の原子核に吸収されて中性子を放出する。U/Th 系列の α 線エネルギーは最低エネルギーの Th-232 の 4.012MeV と最高エネルギーの Po-212 の 8.785MeV の間に収まる。[24] なお、地殻中に多く含まれる原子として O や Si,Al が挙げられる。[25] O の同位体で最も多い O-16 については U/Th 系列の α 線で (α,n) 反応の Threshold energy を超えないが、O-17 や O-18 については容易に超える。[1]

表 2.3: 大陸地域の地殻における元素存在度 (ppm) 上位 5 種

元素	クラーク数 (ppm)
O	495,000
Si	258,000
Al	75,600
Fe	47,000
Ca	33,900

2.2　中性子エネルギーと反跳原子核のエネルギー

環境中性子は原子核と弾性散乱を起こす。環境中性子が暗黒物質直接探索実験における標的原子核を反跳するときのエネルギーと暗黒物質が標的原子核を反跳するときのエネルギーは同程度であるため、深刻な背景事象となる。1 章の通り、10GeV Mass の WIMP が Ar 原子核を反跳した場合に Ar 原子核の反跳エネルギーは数十 keV である。中性子が弾性散乱で与える反跳エネルギーは原子核反跳角 θ を用いて次のように書ける。

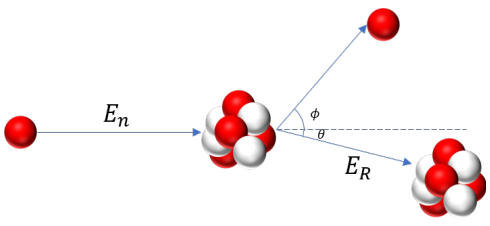

図 2.12: 実験室系での弾性散乱

$$E_R = E_n \frac{4A}{(A+1)^2} \cos^2\theta \tag{2.4}$$

また、重心系での中性子散乱角を用いると反跳エネルギーは

$$E_R = E_n \frac{2A}{(A+1)^2} (1 - \cos\Theta) \tag{2.5}$$

と書ける。なお、重心系での反跳角と実験系での散乱角は次の式で結ばれる。

$$\cos\phi = \frac{A\cos\Theta + 1}{\sqrt{A^2 + 2A\cos\Theta + 1}} \tag{2.6}$$

2.3 測定現状

地上における環境中性子スペクトラムはよく理解されている。そこで、地下環境中性子はというと、フラックスについてはよく理解されている。世界の実験サイトにおける測定結果を以下の表に纏める。

表 2.4: 中性子測定の先行研究

中性子 Flux[cm^2/s]	測定場所	検出器	エネルギー範囲	Ref.
3.43×10^{-3}	早稲田大学	液体シンチレータ	<10MeV	[1]
1.2×10^{-2}	東京大学本郷キャンパス	^{3}He 比例計数管	[0.5 eV, 10MeV]	[26]
5.7×10^{-3}	Gran Sasso（トンネル外）	^{3}He 比例計数管	>10keV	[27]
7.70×10^{-4}	神戸大学	^{3}He 比例計数管	[0.5eV, 10MeV]	[28]
7.69×10^{-3}	千葉	Bonner Ball	All	[29]
7.47×10^{-2}	仙台	Bonner Ball	All	[30]
6.159×10^{-6}	神岡地下	スチルベンシンチレータ	[0.5MeV, 25MeV]	[31]
2.8×10^{-5}	神岡地下	^{3}He 比例計数管	[0.5eV, 10MeV]	[26]
1.15×10^{-5}	神岡地下	^{3}He 比例計数管	[0.5eV, 10MeV]	[32]
6.06×10^{-6}	神岡地下	^{3}He 比例計数管	[0.5eV, 10MeV]	[28]
$(6.86 \pm 0.14)\times 10^{-6}$	神岡地下	^{3}He 比例計数管	[0.5eV, 10MeV]	[53]
$23.52\pm0.68^{+1.87}_{-2.13} \times 10^{-6}$	神岡地下	^{3}He 比例計数管	<10MeV	[33]
2.56×10^{-6}	Gran Sasso（トンネル内）	^{3}He 比例計数管	>10keV	[27]

これらはスチルベンシンチレータによる測定を除き、スペクトラム形には感度を持たない検出器で測定された結果である。しかし、近年 He-3 比例計数管を用いた測定で Setup を工夫し（そのまま設置した状態とポリエチレン＋ボロンシートで覆った状態の検出レート比を用いる）、Geant4 Simulation と組み合わせることで直接測定ではないが、スペクトラム形を予想することに成功している。

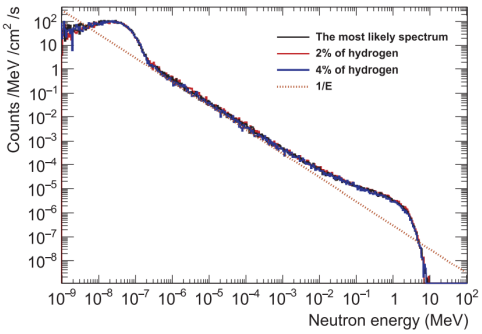

図 2.13: ^{3}He 比例計数管の測定と Geant4 を組み合わせて推定された中性子スペクトラム [13]

今後、直接測定により地下環境中性子のエネルギースペクトラムを得ることは相互検証の観点から非常に重要である。これは本論文の地下測定におけるモチベーションである。

2.4　本論文の展開

本論文では環境中性子測定に高速中性子[1]に感度がある液体シンチレータを用いる。その説明を 3 章で行う。2020 年 8 月に早稲田地上で行われた液体アルゴン一相式暗黒物質直接探索実験では、シミュレーションで予想されていた背景事象を上回る原子核反跳事象が観測された。この超過事象を我々の実験グループ（ANKOK）では、ミューオンが検出器部材や周辺シールドと相互作用したことによる中性子であると考えて理解を試みた。その報告を 4 章で行う。地下では宇宙線起因の環境中性子が減少する結果、岩盤起因の環境中性子に対して検出器部材由来の α 線が主要なバックグラウンドとなり低エネルギーな中性子を測定することに難があった。より低閾値な地下環境中性子測定に向けた一連の取り組みを 5 章で報告する。6 章では、4 章と 5 章の結果を踏まえ、環境中性子に対する理解をまとめる。

[1]厳密な定義はないが、高速中性子は 0.1MeV から 1.0Me 以上のエネルギーの中性子をいう。液体シンチレータで 100keV の中性子を観測するのはなかなか難しい。

3 液体シンチレータ

本測定では、中性子検出に液体シンチレータ（液シン）を用いる。液体シンチレータは有機シンチレータの一つである。水素が豊富な物質であるため、弾性散乱したときに中性子は有効にエネルギーを落とすことが出来る。水素は中性子がほぼ全エネルギーを落とすことが出来る標的原子核である。以下に、使用した Saint-Gobain 社製の液シン、BC-501A の特徴を記す。

3.1 物性値

表 3.1: BC-501A の諸特性 [2]

アントラセンに対する光量 [%]	78
最大強度の放出波長 [nm]	425
発光時定数 [ns]	3.16, 32.3, 270
水素原子数 [x 10^{22}/cc]	4.82
炭素原子数 [x 10^{22}/cc]	3.98
原子数比 [H/C]	1.212
電子数 [x 10^{23} /cc]	2.87
密度 [g/cc]	0.874
屈折率 (屈折率@425nm)	1.505(1.530)
引火点 [℃]	24
溶媒から溶質へエネルギーの伝わる時定数 [ns]	1.66
1keV あたりの光電子数	
（Burle 社の PMT 8575 による評価)	1.7
電子に対する陽子 (MeV 領域) の発光量	$E = 0.83P - 2.82[1 - exp(-0.25P^{0.93})]$

ここで、P は反跳陽子のエネルギーである。発光時定数には fast,medium,slow と 3 つ存在し、dE/dx が異なればその割合も変わる。中性子の場合には dE/dx が大きいため、Slow 成分は増す。γ 線の場合は dE/dx が小さいため、Slow 成分は減少する。以上の理由から同じエネルギー（Total）であっても、Slow/Total という値を用いることによって粒子を弁別することが出来る。

3.2 キャリブレーション手法

反跳原子核のエネルギーはシンチレーション光になり、光センサで観測されて電圧に変換される。エネルギーがシンチレーション光に変換されるときに、クエンチングが生じる。電圧と入射粒子によるエネルギーを対応させるために、キャリブレーションを行う。γ 線源を用いた場合、電子が反跳されてシンチレーション光を発するため、電圧値は electric recoil equivalent energy な値となる。そのときの発光量（電圧値）は keV_{ee} や MeV_{ee} といった単位であらわされる。Cs-137 の 662keV 全吸収ピークが観測された場合その電圧値は $662keV_{ee}$ となる。なお、数 MeV までの領域であれば、反跳電子のエネルギーと液体シンチレータの光量はリニアな関係にあることが知られている。[38] 中性子線源を用いてキャリブレーションを行った場合、原子核（水素や炭素）が反跳されてシンチレーション光を発するため、電圧値は nuclear recoil equivalent な値となる。そのときの電圧値は keV_{nr} や MeV_{nr} といった単位であらわされる。反跳された原子核が 1keV の運動エネルギーを持っていて、落とした光量が観測された場合、その値は $1keV_{nr}$ となる。手法としては、自発核分裂する核種である Cf-252 の中性子連続スペクトラム（10MeV 程度まで広がる）や

AmBe の（α,n）反応による中性子連続スペクトラム（同様に 10MeV 程度まで広がる）、Deuterium - Deuterium neutron generator[36][37] を用いた単色 2.45MeV 中性子などを用いる様々な手法がある。なお、α 線や陽子ビームも同様に原子核反跳を起こすが、一般に液体シンチレータのキャリブレーションには用いられない。

γ 線のコンプトンエッジを用いてキャリブレーションを行う方法は不定性が大きい。コンプトン散乱したときに電子が受け取るエネルギー E_e は、

$$E_e = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{m_0 c^2}{E_\gamma(1-\cos\theta)}} \tag{3.1}$$

で表される。γ 線が電子に対して 180 度後方散乱されたときに電子は最大のエネルギーを受け取り、コンプトン端となる。

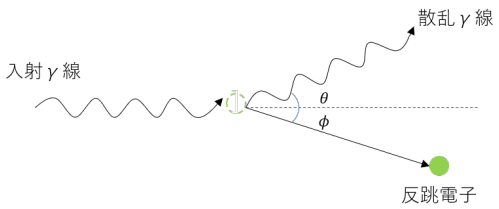

図 3.1: コンプトン散乱

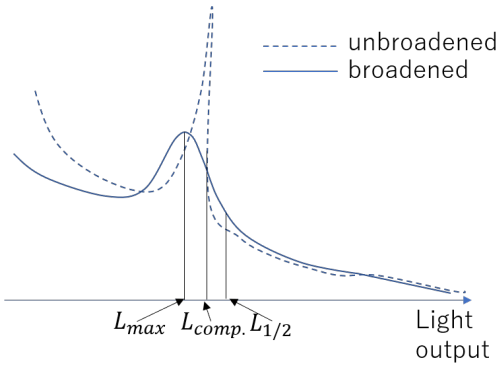

図　3.2:　コンプトンエッジ（unbroadened,broadened）

一般的にコンプトンエッジのピークの値は分解能でなまされてコンプトン端に一致しないという問題がある。そのため、コンプトンエッジを誤差関数で Fit し、コンプトンピークの半分の値を取る箇所をコンプトン端とする手法が用いられる。但し、コンプトンピーク、コンプトンピークの半分の値を選んだ場合のどちらでも数 % の不定性があることが知られている。[38][39][40]

他の検出器を組み合わせてピークを測定する Back Scatter 法を使えば、不定性はいくらか良くなる。γ 線源が標的に入射して 180^{circ} 反跳するときに電子に与える最大のエネルギーは (**??**) 式より算出される。反跳された γ 線源は別の検出器（NaI）などを用いてタグすることで 180^{circ} 反跳した事象を同定する。Cs-137 の 662keVγ 線を用いた場合は、まず 478keV のエネルギーが液体シンチレータの電子に与えられ、その後 184keV のエネルギーが NaI の電子に与えられる。

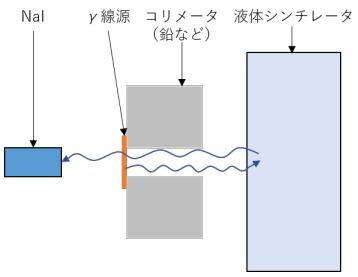

図 3.3: Back Scatter 法の概念図

3.3 元の中性子エネルギーの再構成法

実際に観測できるのは反跳原子核（陽子、炭素）の落とすエネルギーである。ひいては PMT で観測された反跳原子核のシンチレーション光が電圧に変換された値である。但し、元の中性子エネルギーと反跳陽子のエネルギーには弾性散乱の式より相関があるため、エネルギーを再構成することが出来る。陽子の反跳角により落とすエネルギーも変わるが、TOF 法を用いて統計的に処理を行うことで元のエネルギーを再構成する。。TOF 法で求めた応答関数を直接適用するのは分解能が悪いため、シミュレーションが TOF データを再現する場合、それを応答関数として用いる場合もある。[1]

4　Run20.1 で観測された原子核反跳背景事象の検証

4.1　Run20.1 結果

2020 年 8 月に行われた ANKOK 実験 Run20.1 では、200L 容器外部に 20cm 相当のポリエチレン、10cm の鉛、2cm の銅シールドを設置していた。また、200L 容器内部においても検出器周辺に 2cm の銅シールドを設置していた。Geant4 を用いて本シールドを仮想空間上に実装し、地表面における地上環境中性子スペクトラムを打ち込んだところ、信号領域の 10keV 付近では 1 Events/day/kg/keV が期待されていた。しかし、実際にはそれより一桁多い原子核反跳事象が観測される結果となった。

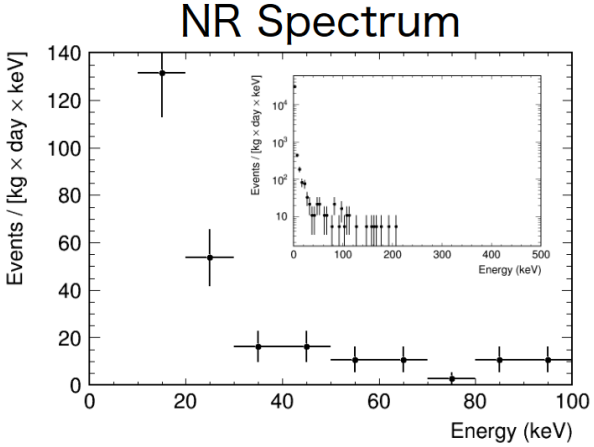

図 4.1: ANKOK 実験 Run20.1 で観測された原子核反跳事象スペクトラム

本原因を考察するのが本章の内容となる。推定される原子核反跳事象の原因を網羅的に挙げると、以下が全てと考えられる。

表 4.1: Run20.1 で観測された中性子の起因

候補	定量評価
U/Th 系列の自発核分裂	地下環境において主要な成分であって、 地上の 1/1000 程度しか存在しないと考えられる。 したがって主要な成分ではない。
U/Th 系列の (α,n) 反応	地下環境において主要な成分であって、 無酸素銅やアルゴンに含まれる U/Th 系列の量では $10^{-3} events/day/kg/keV$ と考えられる。 したがって主要な成分ではない。
二次宇宙線	地上環境において主要な成分であるが、 Geant4 によればポリエチレン 20cm 相当のシールドにより $\mathcal{O}(10^{-1}) events/day/kg/keV$ まで減少すると見積もられている。
宇宙線による反応	μ と部材の反応がメインに考えられる。 過程としては原子核破砕、光核反応、原子核捕獲が挙げられる。 ANKOK 実験では量を未評価。

自発核分裂の量については鈴木修論より予想した。地下では宇宙線起因の中性子より岩盤起因の中性子が多いため、鈴木修論で観測された地上の 1/1000 の量の中性子もほとんどが岩盤起

因と推測される。[1] (α,n) 反応により予想される中性子量については、引用先で示された量より計算した。例えば、以前の Study から液体アルゴン中の Po-214 量は 100mBq 程度であることが分かっている。[6] これが直径 30cm ×高さ 30cm の円柱内で (α、n) 反応を起こしたときには、0-800keV のエネルギー領域では 150 事象程度の中性子量 (livetime:1 か月) となる。これを換算すると、$150/800(keV)/30(days)/29.7(kg)$ より $=0.2\times10^{-4} events/day/kg/keV$ となる。[7] 無酸素銅についても同様で、一般的に (α,n) 反応は原子番号が大きいほど起こりづらいため、数十 kg の銅に 200mBq/kg(Po-210,XMASS 測定)[8] 含まれていてもオーダーで $10^{-}4$ 内に抑えられることが予想できる。放射平衡を仮定して上流と下流を合わせてもオーダーで $10^{-3} events/day/kg/keV$ と予想が出来る。二次宇宙線についてはシミュレーションによる見積もりから説明しえない。その結果、最後に残るのは宇宙線による反応である（物理過程は詳しくは 2 章を参照）。この予想を検証する。

4.2　検証のためのセットアップ

実験場所は Run20.1 の実験場所と同じ早稲田大学 65 号館 109 号室である。液シンの BC-501A は、アルミ容器に封入されている。サイズは直径が 5.08 [cm]、高さが 5.08 [cm] であるため、体積は 0.103 [L] であり、質量は 0.090 [kg] である。このサイズは Run20.1 の Fiducial Volume の直径 6.4 [cm]、長さ 5.0[cm] と比べて同程度 (0.8 倍) である。本液シンには PMT H1161(Hamamatsu ホトニクス社製) を組み合わせている。

図 4.2: 使用する液体シンチレータ

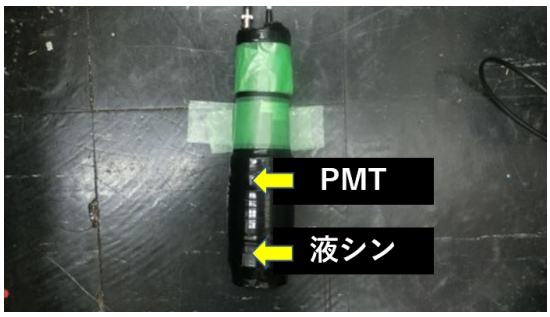

図 4.3: 液シンと PMT のアッセンブリ

セットアップを示す。液シン検出器の上面及び左右は鉛で囲まれている。また、鉛は 85cm 長のプラスチックシンチレータ 3 枚と 65cm 長のプラスチックシンチレータ 1 枚で囲まれている。データは FADC(SIS 3316(250 M samples/second)) で取得し、その際のトリガーは液シンのセルフトリガーとした。

図 4.4: 液シンと鉛の位置

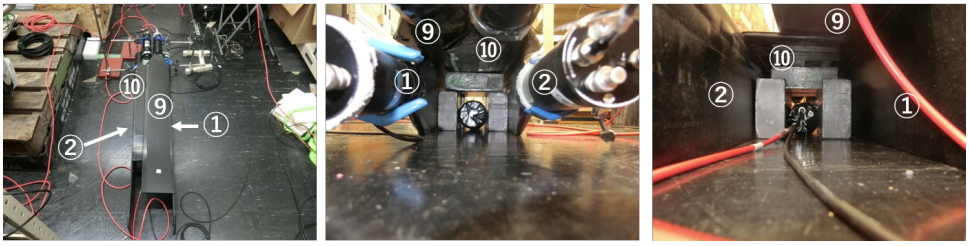

図 4.5: 鉛とプラスチックシンチレータの位置

取得した波形を数例示す。本セットアップで、μ が縦に通過した事象、横に通過した事象、ハドロンシャワーもしくは電磁シャワーを起こした事象が観測できる。

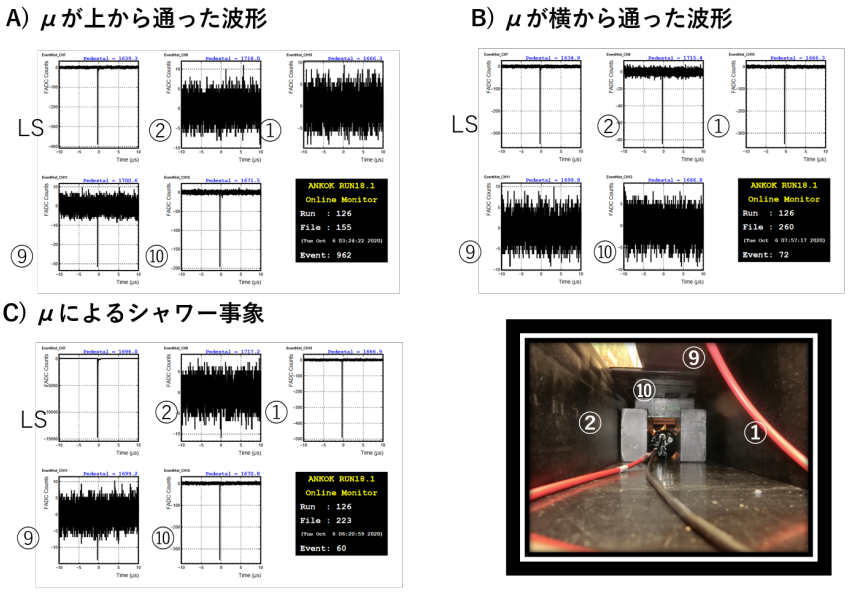

図 4.6: 生波形

μ が部材と反応するかどうかを見ることが目的なので、プラスチックシンチレータはそのままに鉛を抜いた状態のデータも取得した。livetime は鉛を置いた状態、抜いた状態でそれぞれ 1.78 日、2.02 日である。なお、エネルギーキャリブレーションには環境 γ 線の K-40 のコンプトンピー

クを利用した。

4.3　解析

本解析で使用する変数の定義を記す。

表 4.2: 変数の定義

変数名	変数の定義領域 [us]
Pedestal	(-0.7,-0.5)
Total	(trigger time - 0.028, trigger time + 0.348)
Fast	(trigger time - 0.028, trigger time + 0.048)
Slow	(trigger time + 0.052, trigger time + 0.348)
Peak	(Fast 領域での最大値)

ここで、trigger time は全 20(us) の Time Window の内、-10(us) から+10(us) のピークの 1/2 を超える時間を-10(us) から+10(us) に向かって探索していき、最初に超える時間。通常、信号の立ち上がりの時刻になる。いくつかの分布を載せる。なお、プラスチックシンチレータに信号が来ないことを波形のピーク値が Pedestal の 3σ 以内であることとする。次図の赤線以下が 3σ 以内。以下、緑のヒストグラムには鉛を置いた状態でどのプラシンにも信号が来ないことを要求している。

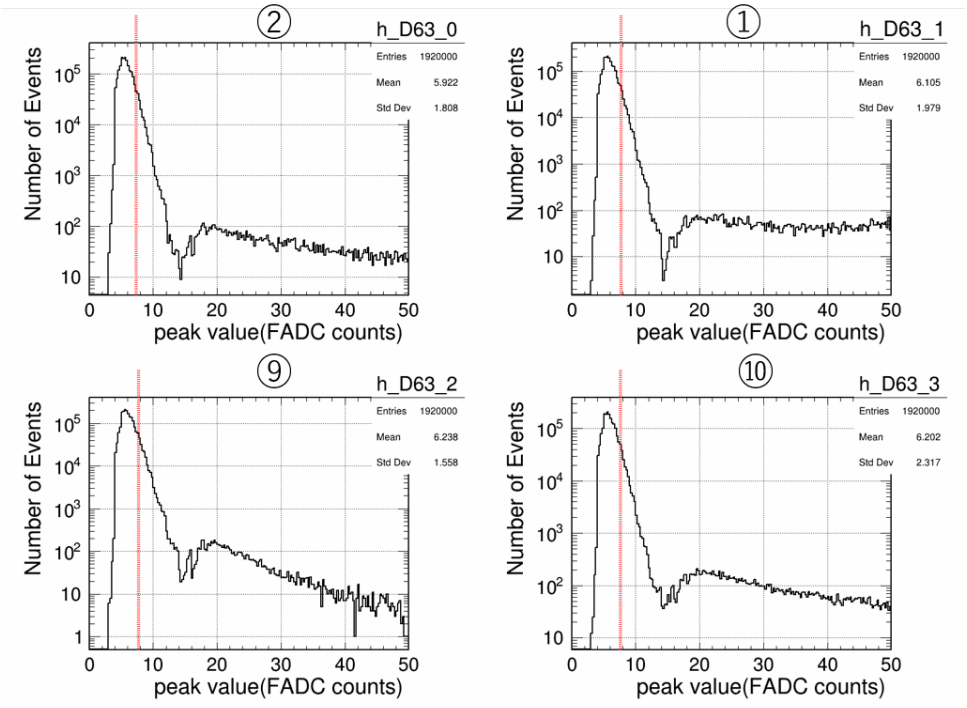

図 4.7: ピーク値からペデスタルを引いた分布

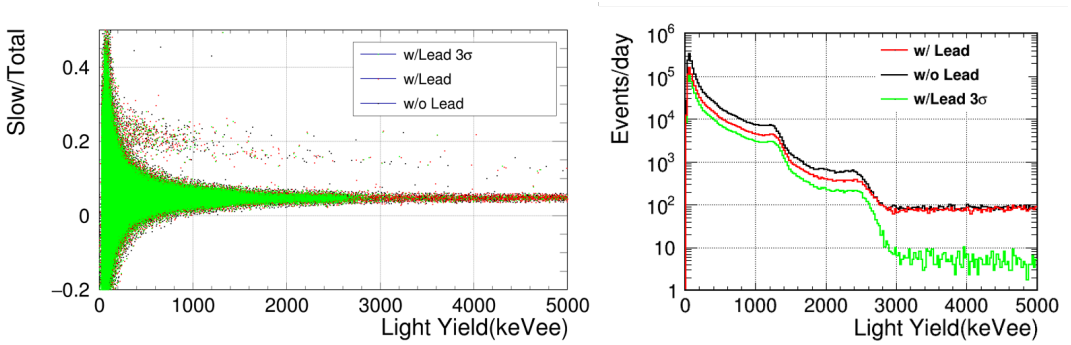

図 4.8: PSD 分布と光量分布

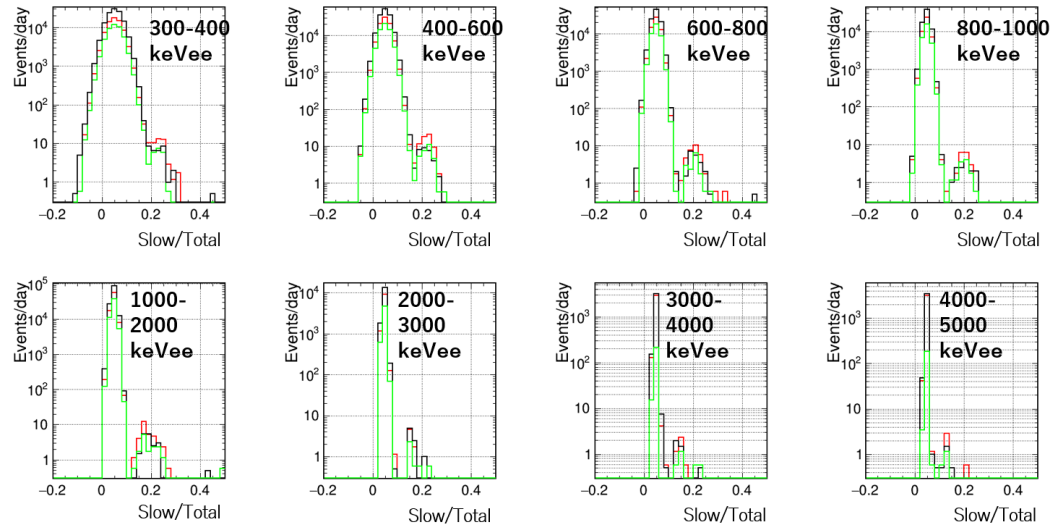

図 4.9: Slow/Total 分布

PSD 分布を見ると、中性子と γ 線が弁別出来ていることが分かり、これを x 軸に射影することで光量分布が得られ、y 軸に射影することで Slow/Total 分布が得られる。3000keVee 以上に広がるイベントは μ 起因と考えられている。この成分は鉛の前後で変わらない。対して、プラスチックシンチレータに信号が来ないことを要求すると減少する。Slow/Total 分布には 2 ガウシアンフィットを行い、中性子量を算出することが出来る。なお 3000-5000keVee は統計が足りずフィットできなかったため Slow/Total $\in$ (0.1,0.2) に含まれる事象数をカウントして中性子数とした。Events/day/kg/keVee に焼き直せば次図の通りである。

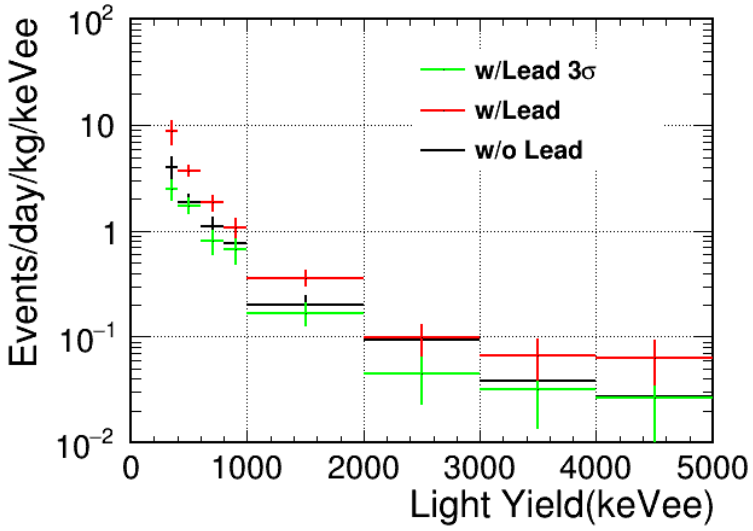

図 4.10: 中性子スペクトラム

明らかに鉛が原因で中性子は増加する。定量的には 300-1000keVee では 2.23 ± 0.37 倍となる。1000-5000keVee では 1.65 ± 0.36 倍となる。プラスチックシンチレータが鳴らないことを要求すると、緑色のスペクトラムになる。これは鉛を置いてない状態と同程度の観測量になる。以上、本節の測定結果より鉛起因で中性子量が増加することは明らか。プラスチックシンチレータが信号を感じない状態を要求することで鉛を置いてない状態と同程度になるため、増加分は μ の影響で説明できる可能性が高い。詳細な議論は 6 章で行う。

5　神岡地下環境中性子測定に向けた低バックグラウンド検出器の構築

5.1　地下環境についての一般的な説明

一般的に地下環境については以下の性質が挙げられる。

- 岩盤により遮蔽されるため宇宙線の影響が減少する。
- 遮蔽体には自然の環境（山など）を用いるため、水分量が年間で変化する。そのため、宇宙線にも年間で変動が見られる可能性がある。
- 閉鎖空間であるため室内の大気 Rn 濃度が高い。

1 つ目は節 2.1、環境中性子で記したため割愛する。2 つ目を説明すると、山の水分量は雪解けの季節である春先が最も多いことが知られている。夏季も集中豪雨で水分量が増す可能性がある。中性子などは水素の量に敏感なため変動する可能性がある。3 つ目を説明すると、地下空間は外気が侵入・排出経路が限られており空気が淀みやすい。そのため、岩盤に含まれる U/Th 系列から生成される Rn-222（ラドン）や Rn-220（トロン）は溜まり続けることになる。加えて、山であれば季節により実験サイトに吹き込む風の向きは変化する。一方向に通りぬけるのであればよいが、両方向から外側から内向きに風が吹き込む場合もありその場合は圧縮され、室内の Rn 濃度が上がり続けることになる。一つ例を挙げると、一般的な Rn-222 濃度は数 Bq から数十 Bq 程度であるが [56]、神岡宇宙素粒子研究施設（岐阜県池ノ山 1,369m）では、冬期（10-4 月）と夏季（4-10 月）で Rn-222 濃度が 100 Bq/m^3 から 2000 Bq/m^3 まで変化することが知られている。[43]

5.2　旧液体シンチレータ検出器による以前の Study

地下環境では宇宙線起因の環境中性子が減少する結果、α 線が中性子測定におけるバックグラウンドになる。二者は dE/dx が近いため、単純な Slow/Total で粒子弁別を行うことは難しさを伴う。本測定には先行研究があり、2016 年度における測定以降、旧検出器（5L）では、以下の PSD 分布が得られていた。また、Slow/Total 分布を 3 ガウシアンでフィットすることにより、α 線スペクトラムが得られていた。[1]

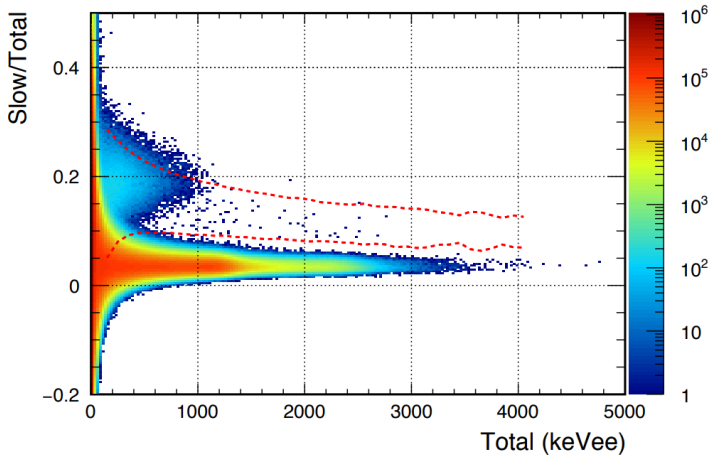

図 5.1: 旧検出器で観測された PSD 分布

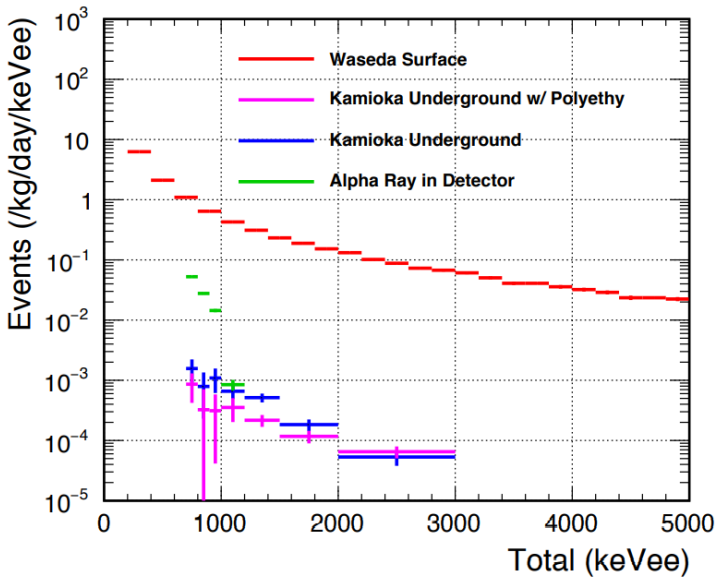

図 5.2: 旧検出器で得られた中性子スペクトラムと α 線スペクトラム

この α 線は検出器部材由来と考えられている。2 章に書いた U/Th 系列には半減期が非常に短い核種があり、dt（トリガー信号の時間差）<1ms を要求することで 98.5% の Efficiency で α 線をタグすることが出来る。

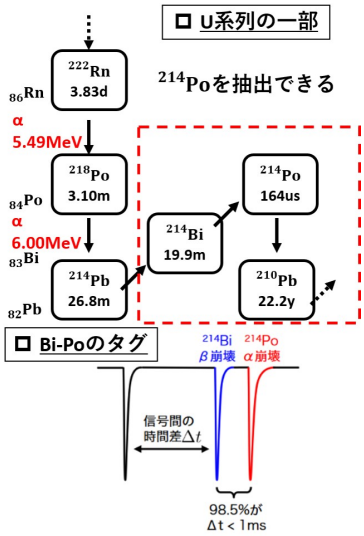

図 5.3: Po-214 のタグ方法

旧検出器では、本手法で特定の核種を見たときにピークを作らなかった。α 線の飛程は短いため、液体シンチレータ内に核種が存在する場合、全てのエネルギーを液シン内で落とすものと考えられる。対して、バルク領域（液シンとの界面でない部分）に核種が存在すれば、一部のエネルギーを落としながら液シン中に飛び出してくるため、低エネルギー側に tail 成分を残すことが予想される。旧検出器のスペクトラムは後者に近いものであった。下流の Po-214 が含まれているならば、上流の他の核種も含まれていると考えるのが自然である。旧検出器は大阪大学で使用されて 20 年以上経過しているものであるにも関わらず、α 線が見えていることから、半減期の長い

上流の核種が存在することが予想される。例えば、Ra-226 は 1600 年の半減期を持つが、部材に含まれていた場合は半永続的に α 線が生じることになる。以上から、低放射性不純物な方法で新たに検出器を作製する必要があった。作製した検出器の説明を次節で行う。

5.3　新低 BG 検出器の特徴

新低バックグラウンド検出器の特徴を以下に記す。

- PMT を両読みにすることでシンチレーション光の収集効率が上がり、分解能が向上する。
- 電解研磨を施すことで、表面積が減少する。表面積が減少すると、検出器部材からの Rn ガス (Ra の崩壊で生成）の染み出しレートが低減される。
- 液シンを純化することで初期の放射性不純物が除去できる。

下 2 つが低バックグラウンド化に関した特徴である。電解研磨と純化について次項で説明していく。

5.3.1　電解研磨

通常ステンレス容器に対しては、バフ研磨が行われる。バフ研磨は鏡面仕上げにすることが目的であり、表面粗さを小さくする目的では行われてはいない。[11] つまり、見かけ上は鏡面でもミクロに見れば微細な凹凸が存在する。凹凸には、研磨剤などが付着し汚染の要因となる。電解研磨は残った凸部に選択的に電流を流し、溶出させるため平滑化が期待できる。

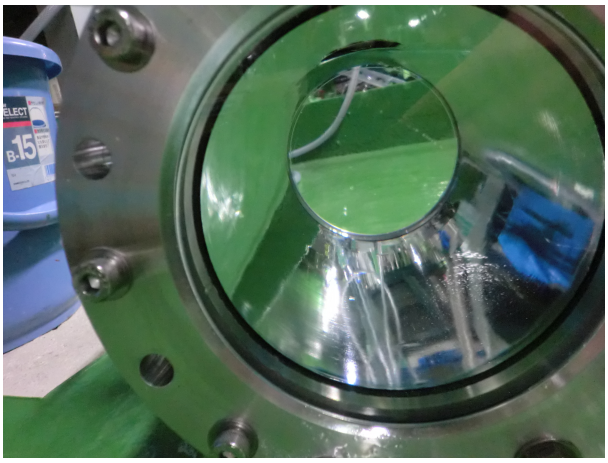

図 5.4: 電解研磨した内面の写真

5.3.2　純化

U/Th 系列は Rn を除いて全て金属元素である。金属イオンは有機層より水層に 10-1000 倍ほど溶けやすいため、水と混ぜて放置することによって液シン中に存在する放射性不純物を除去することが出来る。[55] この方法を液液抽出と呼ぶ。なお、水層の水には比抵抗 18.3MΩ/cm の金属イオンを含まない超純水を使用する。（但し、Rn は脂溶性なので水より液シンに溶けやすい。）また、酸素が含まれているとクエンチング（消光）を起こす。液シンに窒素を流し続けることで窒素が溶け込み分圧が上昇するため溶存酸素は追い出すことが出来る。このとき、マイクロバブル

の窒素を発生させ、液シンと接触する表面積を多くすることで効果的に溶け込ませることが出来る。以上の 2 つを行うために写真に示すセットアップを組んだ。

図 5.5: 純化セットアップ

作業工程を記す。

1. 混合タンクを先に超純水で共洗いしておく。（1L × 3 回）
2. 混合タンクは負圧にし、液体シンチレータ検出器に加圧して液シンを混合タンクに圧送する。
3. 混合タンクのふたをあけ、直接超純水を流しいれる。後で液シンを戻すときに量が減るため余分に液シンも追加する。
4. 混合タンクのバブリングを 100 分間行う。その後 2 時間層分離を待つ。
5. 検出器容器に N_2 ガスを入れ、真空引きを 3,4 回繰り返す。（バッチパージ）
6. 検出器容器は負圧にし、混合タンクに加圧して検出器容器に圧送する。

また、純化において主要な物品を記す。

- ロータリーポンプ
- ステンレス管 (SUS304)
- ナフロン (R)PFA-HG チューブ（ニチアス）
- PTFE フィルター（アズワン）
- ステンレス加圧容器 TMC-10（ユニコントロールズ）

5.4　セットアップ

検出器の特徴及び、実際の測定セットアップについて記す。

- 検出器サイズ：ϕ 14cm × L 30cm（4.6L,4.0kg）
- PMT：H6527×2
- 測定場所：神岡宇宙素粒子研究施設 Lab-B（神戸大学、NEWAGE の実験サイト）
- 静的シールド：周囲に鉛シールド 10cm と上部に銅シールド 5cm
- DAQ：FADC CAEN V1724D 100Ms/s

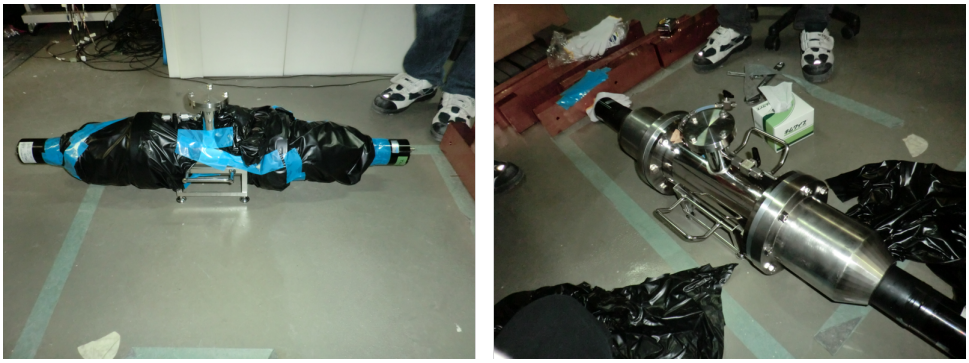

図 5.6: 低バックグラウンド検出器（左は遮光のためにブラックシートを巻いたもの、右はそれを外したもの

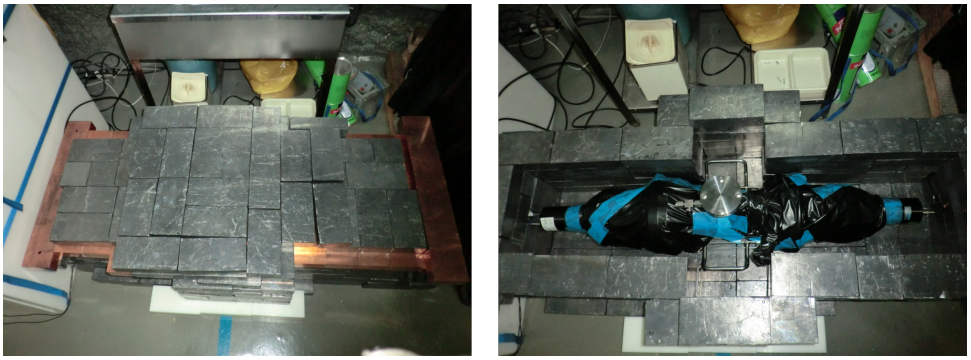

図 5.7: シールド（左は積み終わったシールド、右はおおよそ銅の高さまで崩したシールド）

図 5.8: DAQ setup

5.5　解析

解析に用いる変数名を定義する。

表 5.1: 解析に用いる変数と定義

変数名	定義
pedestal[us]	(-0.50,-0.30)
Total[us]	(trigger time - 0.03, trigger time + 0.05)
Slow[us]	(trigger time + 0.06, trigger time + 0.35)
dt[s]	FADC の time stamp の時間差
L-R Asymmetry	(Left の PMT の光量 - Right の PMT の光量)/Total

なお、L-R Asymmetry を求める際には、前提として 30cm 長の検出器の中央で、左右の PMT の FADC の count 値が等しくなるように補正している。つまり、L-R Asymmetry は検出器形状による光量の依存性だけを見ることになる。

5.5.1　評価法

2019 年 6 月より測定を開始した。データ取得開始直後の PSD 分布と、dt<1ms を要求したときの PSD 分布を示す。

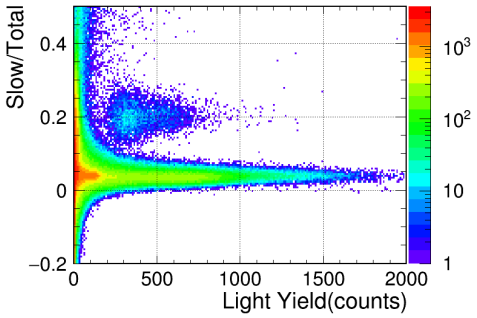

図 5.9: PSD 分布

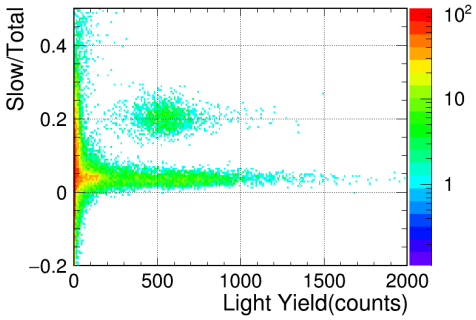

図 5.10: dt<1ms を要求した PSD 分布

Slow/Total∈(0.1,0.3) で区切って光量分布を見ると、Po-214(7.69MeV) の光量分布が確認できる。Accidental は dt>1ms の分布の 1st bin が dt<1ms の 1st bin と同じになるようにスケールして算出して引いてある。図 5.12 で水色のヒストグラムが Po-214 のヒストグラムを算出するときに dt<1ms のヒストグラムから引いた Accidental。

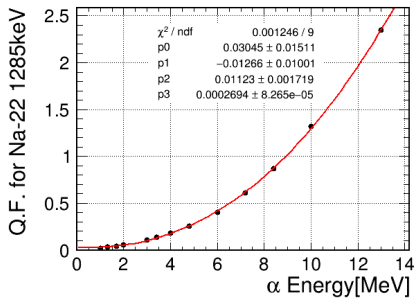

図 5.11: 1285keV の γ 線に対する α 線の光量比

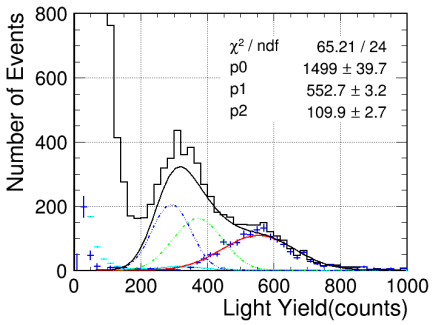

図 5.12: Po-214,Po-218,Rn-222

α 線のエネルギーと光量の変換のスケール値は、液体シンチレータに対してよく調べられている [52]。その値を元に Po-218(6.00MeV) と Rn-222(5.49MeV) の値を調整してやると、初期の α 線分布は Rn-222,Po-218,Po-214 でほぼ説明できることが分かった。実際に用いた値は、Po-214 の光量を 1.000 とすると、Po-218 は 0.671、Rn-222 は 0.529 とした。

5.5.2　時間変化と考察

5.4.1 の算出法で求めた α 線量の時間変化を確認すると、単調減少していることが分かった。

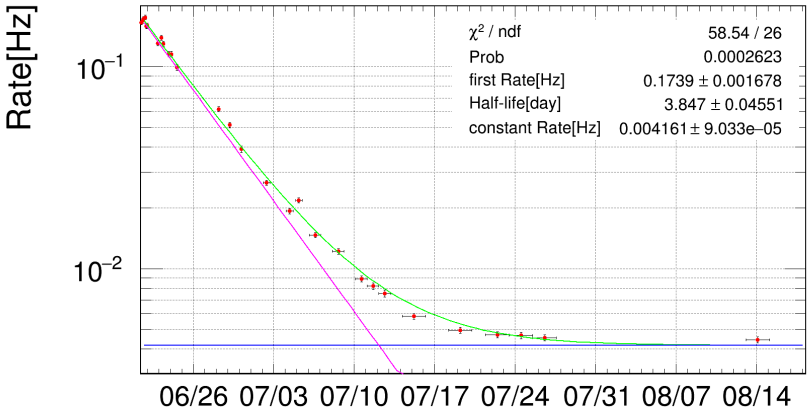

図 5.13: Po-214α 線の時間変化

これを exp と定数関数であらわされる以下の数式でフィットする。

$$p_0 e^{-\frac{t}{p_1/ln2}} + p_2 \tag{5.1}$$

半減期は Rn-222 の 3.8 日とコンシステントであり、十分落ち着くと 4.2mBq になる。初期状態は Rn-222 が豊富であったことが分かる。そして、単調減少することから、内部で生成された Rn-222 ではなく外部から混入した Rn-222 が要因であるとわかる。内部で生成された Rn-222 なら α 線レートは増加していき、ある程度時間が経過したのちに定常状態となるはずである。定数関数になった点からは内部で生成された α 線源が原因と思われる。Po-214 が生成されるためには、上流の核種が存在しなければならない。例えば、項 5.4.1 の低エネルギー側に Ra-226(4.78MeV) の落とすエネルギーが観測されるはずである。詳細は次項に書く。

5.5.3　L-R Asymmetry 分布による α 線源の推定

検出器中心に Cs-137 を設置して左右の PMT の光量が一致するように補正してから L-R Asymmetry を算出している。検出器位置と L-R Asymmetry の関係は図 5.14 のセットアップでポジションスキャンを行い取得した。なお、本データはデータ取得開始直後ではなく、およそ 3 か月経過してから取得した。実は、その間に PMT グリスが検出器窓面から流れ落ちておりその影響が図 5.16 にも現れている。

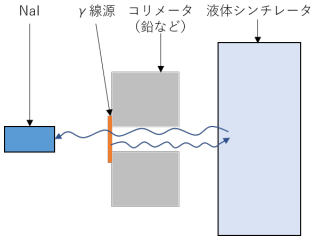

図 5.14: Cs-137 を用いた Back Scatter 法によるポジションスキャン

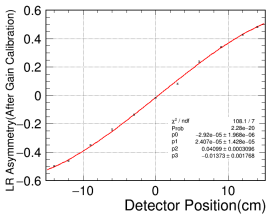

図 5.15: 検出器位置と L-R Asymmetry

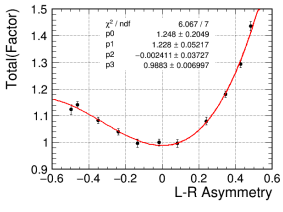

図 5.16: L-R Asymmetry と検出器光量の関係

図 5.17 は、データ取得開始から 1 か月後にに項 5.4.1 と同じ方法で算出した分布である。但し、γ 線のコンタミを避けるために Slow/Total∈(0.2,0.3) の間にセレクションを厳しくしている。

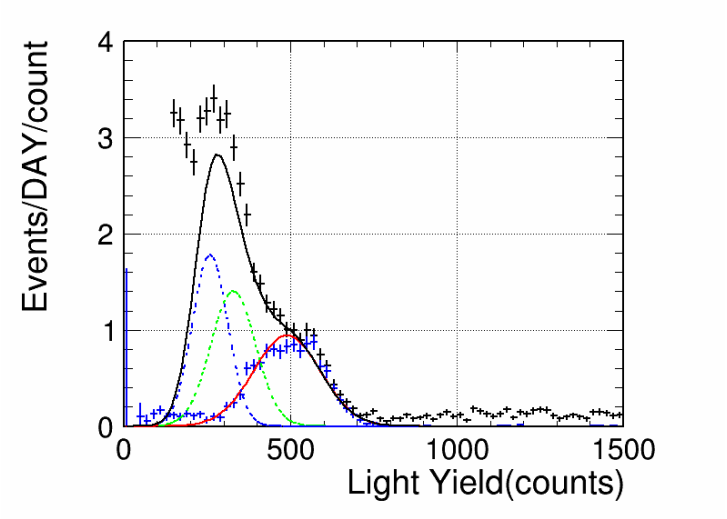

図 5.17: 1 か月後の Po-214,Po-218,Rn-222（左から Po-214,Po-218,Rn-222）

Ra-226 が存在するであろう領域の FADC counts∈(150,200)counts で dt>1ms(Po-214 の anti-tag) の selection をして L-R Asymmetry 分布を確認する（赤色の分布）。対して、dt>1ms かつ周辺領域の (300,500)counts を取ったものが緑で、dt<1ms(Po-214 tag) と Po-214 の光量分布で 2σ 以内を選んだものが黒になる。他の分布と比較しても左右で発光しているものが多いことが確認された。

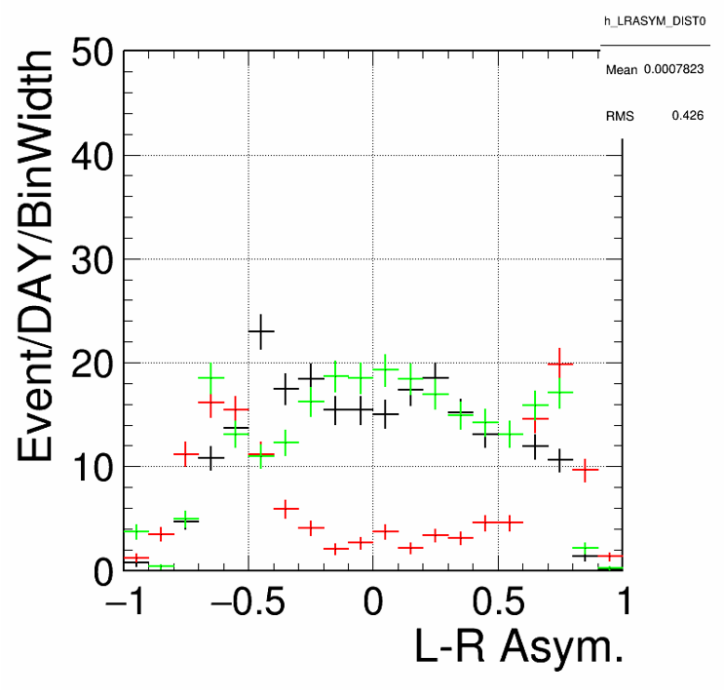

図 5.18: 1 か月後の L-R Asymmetry 分布

また、3 か月後においても同様の領域を確認した結果同様の L-R Asymmmetry 分布の傾向が見られた。但し、Right 側で分布が変化しているのはオプティカルグリスが落ちたためと思われる。

ToyMC は検出器空間で一様に振った後に、L-R Asymmetry に変換し、その後 L-R Asymmetry の σ をガウス分布で振り、なまらせたものを実装している。

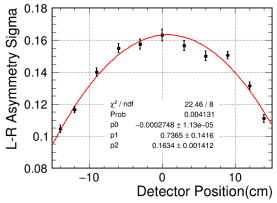

図 5.19: L-R Asymmetry の σ

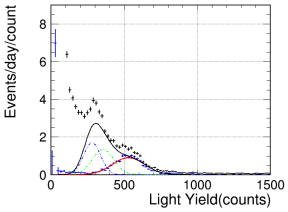

図 5.20: 3 か月後の α 線が主要な領域の光量分布

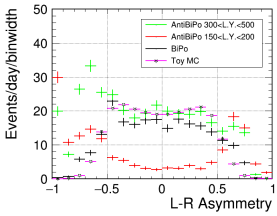

図 5.21: 3 か月後の L-R Asymmetry 分布

なお、L-R Asymmetry を図 5.22 を使って Detector Position に直すと以下の通りである。±15cm までが実検出器の範囲である。underflowbin,overflowbin での振る舞いを見るために ±20cm まで広げている。L-R Asymmetry から Detector Position に変換するときになまされる分が適切に考慮されていれば傾向を見る分に拡張の必要はないが、今回は考慮していないため (L-R Asymmetry から Detector Position へ単射で変換しているため）拡張している。当然ではあるが、L-R Asymmetry で見たときと同様の傾向が見られる。

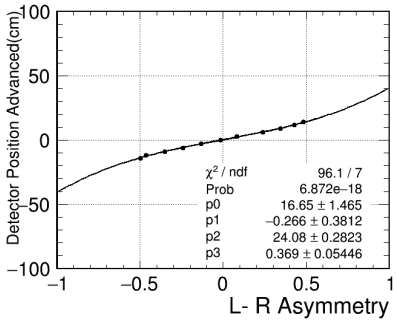

図 5.22: L-R Asymmetry から Detector Position への変換

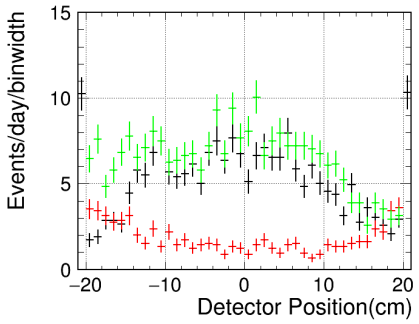

図 5.23: 検出器内の発光位置（Detector Position)

左右にある部材としては、容器とフランジ部をつなぐ溶接材、もしくはガラスが候補に挙げられる。また、神戸大学が所有する AICHAM を使わせて頂いて、ガラス窓の表面 α 線の測定をして頂いた。こちらでも、ガラス窓から α 線が出ている可能性が示唆された。[9] 以上の結果を踏まえて、低バックグラウンド検出器に更なる改善を施した。

5.6　新低バックグラウンド検出器の改良

純化系統の改善、ガラス窓の交換を行った。また、内面に付着していると思われる不純物を落とすため、超音波洗浄も行った。

5.6.1　検出器窓面部材の交換

検出器窓面の部材は合成石英ガラスに交換した。合成石英ガラス（二酸化ケイ素）は四塩化ケイ素を主原材料として化学的に生成される。そのため、金属不純物量は極めて少なく、ppb レベルとされている。これは測定限界により決まっている。[12]

5.6.2　超音波洗浄

作業は XMASS の実験サイト、Lab-C のクリーンルーム内で行った。超音波洗浄は高周波による物理的作用と、洗浄液による化学作用で油やほこりといった表面の汚れを落とす。今回は、水槽型の超音波洗浄機内に水を満たし、そこに内部をエタノールで満たした検出器を入れることで洗浄を行った。ネジなどの小物類は 10 分 ×2 回洗浄した。検出器容器本体はエタノールを入れ替えながら、15 分 ×6 回洗浄した。バルブはグリスが落ちて開閉できなくなるのを避けるために洗浄は行わなかった。

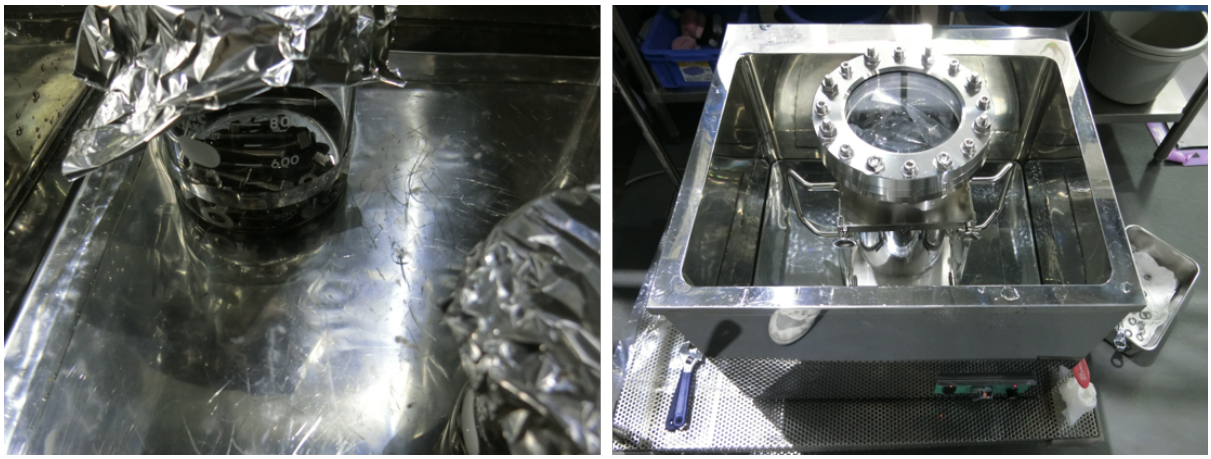

図 5.24: 超音波洗浄

検出器内部に入っているものは、水を詰めた EVOH 袋である。なるべく少ないエタノール量で検出器表面にエタノールを触れさせるため導入した。

5.6.3　外気に触れない純化系の構築

新たに超純水タンクを設置したことにより、外気に触れずに一連の純化作業が行えるようになった。配管図を載せておく。

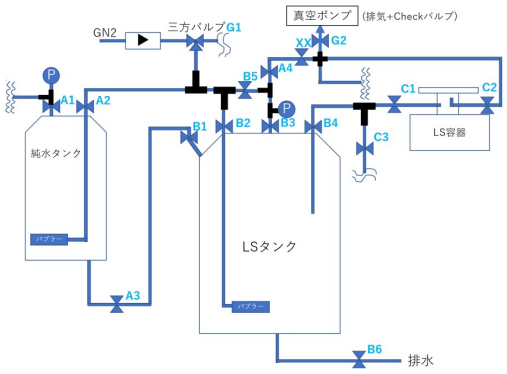

図 5.25: 配管図

作業工程は以下の通り。

1. 純水タンク内を研究棟内の Milli Q（超純水装置）の 16MΩ/cm の水で 3 回共洗い。18.3MΩ の水で 1 回共洗い。その後、18.3MΩ を 10L 汲んで持ち帰る。
2. 純水タンク、混合タンク、検出器容器のすべてに対して、真空を引いて窒素を入れてを繰り替えす。連成計の値で-0.1MPa と 0.1MPa を何度も繰り返す。その後、系に窒素を流し続け 1 日待つ。
3. 純水タンクの水を混合タンクに移送する (2L 程度)。タンクを手でもって振り攪拌する。
4. バブリングを 1 時間程度行う。その後バブリングを stop。混合タンクに N_2 加圧した状態で 1.5 時間層分離を待つ。
5. 混合タンク内の水を排水する。再度バブリング 1 時間程度を行い、N_2 加圧した状態で層分離を待つ。
6. 混合タンクから検出器容器へ液シンを輸送する。このとき、どちらも正圧で 0.03MPa 程度の差圧を保ち続ける。1 時間程度かけてゆっくりと液シンの輸送 (4.6L) を行う。
7. 検出器容器内を減圧して容器を封じ切って終了。

5.7　α 線の再評価

解析に用いる変数には節 5.4 で定義したものと同じものを用いて、以下を進めていく。

5.7.1　時間変化

純化直後の PSD 分布は以下の通り。純化直後は低バックグラウンドだったのだが、1 か月ほど経過すると、増加している様子が見られた。

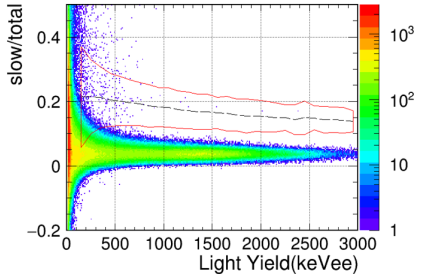

図 5.26: 低バックグラウンド検出器改良後の初期 8 時間分の PSD 分布

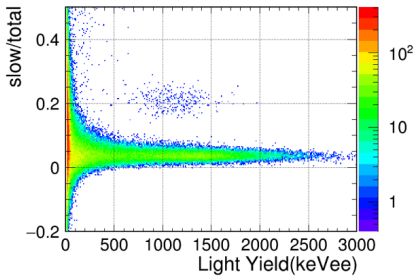

図 5.27: 低バックグラウンド検出器改良後の 1 か月経過時の 1 日分の PSD 分布

Po-214 の時間変化を見ると、初期は低バックグラウンド（0.2mBq）であり、その後単調増加して 2 週間程度で定常状態（1.3mBq）になることが確認できた。データをフィットして確認してみると、時定数は Rn-222 の半減期 3.8 日とコンシステントであった。初期純度は綺麗であることから、超音波洗浄と液々抽出の効果が出ていると言うことが出来る。このことから内部で Rn-222 が生成されて、それが Ra-226（もしくは更に上流の核種）の崩壊レートと平衡になるまで増加したと考えられる。A は constant な状態の BiPo Rate で、B は純化直後の BiPo Rate。C は純化が終わった時刻なので 0 日で固定。$\tau_{\frac{1}{2}}$ は半減期。純化直後のレート B を Fit Parameter として求めるために多少複雑になっている。

$$A(1-\frac{A-B}{A})\mathrm{e}^{-\frac{t-C}{\tau_{\frac{1}{2}}/ln2}} \tag{5.2}$$

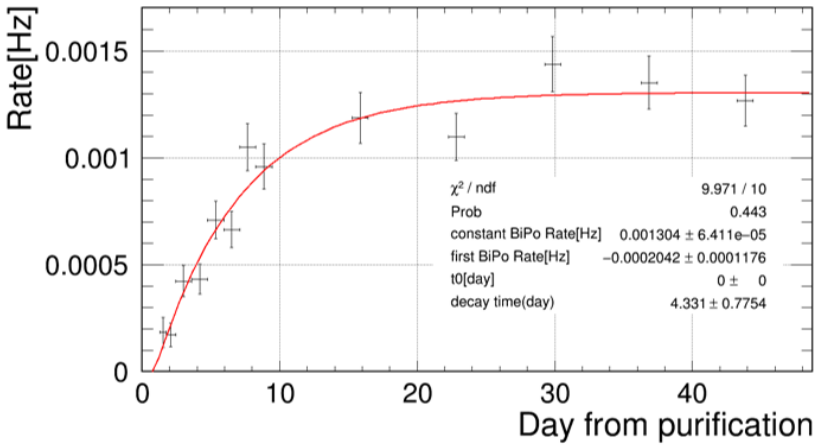

図 5.28: 低バックグラウンド検出器改良後の α 線レートの時間変化

5.7.2　L-R Asymmetry 分布の変化

検出器窓面材を石英窓に交換したことによる変化を見た。今回は、データ取得時間短縮のため、検出器中心のポジションスキャンデータのみ Cs-137 で取得し、残りは Co-60 を使ったコンプトンエッジデータを見ることで位置依存性を確認する手法を取った。まず、Cs-137 で取得したデータから PMT の光量をスケールして、検出器中心では一致するようにする。その後、コンプトンエッジが一致するように Totaal の光量を合わせた後で、コンプトン散乱領域のイベントの L-R Asymmetry をプロットすることで、Detector Position と L-R Asymmeetry の関係、L-R Asymmetry と光量の関係性を得ることが出来る。今回は純化作業直後にポジションスキャンデータを取得したため、比較的 Symmetry な L-R Asymmetry と光量の関係性を得ることが出来た。

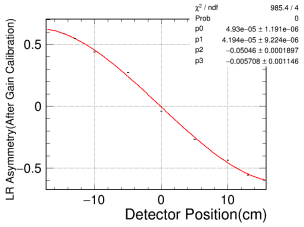

図 5.29: Detector Position と L-R Asymmetry の関係

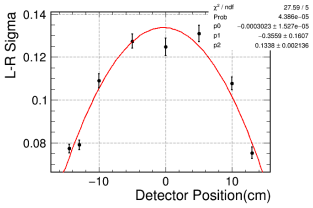

図 5.30: Detector Position と L-R Asymmetry の σ の関係

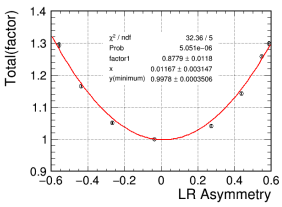

図 5.31: L-R Asymmetry と光量の関係

α 線レートが定常状態になった期間の分布を見ると Ra の領域で左右で発光する成分は見えなくなったことが分かる。

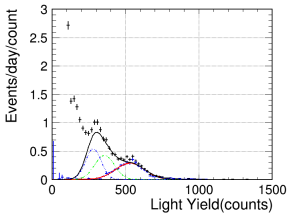

図 5.32: 低バックグラウンド検出器改良後の光量分布

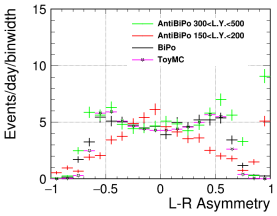

図 5.33: 低バックグラウンド検出器改良後の L-R Asymmetry 分布

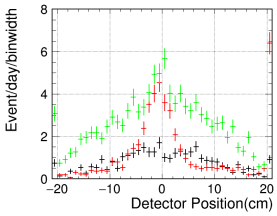

図 5.34: 低バックグラウンド検出器改良後の Detector Position 分布

同じく、Ra-226 は赤の分布、dt>1ms かつ周辺領域の (300,500)counts を取ったものが緑で、dt<1ms(Po-214 tag) と Po-214 の光量分布で 2σ 以内を選んだものが黒。項 5.4.3 と比較すると、サイドに存在していた Ra らしきピークは消滅した。

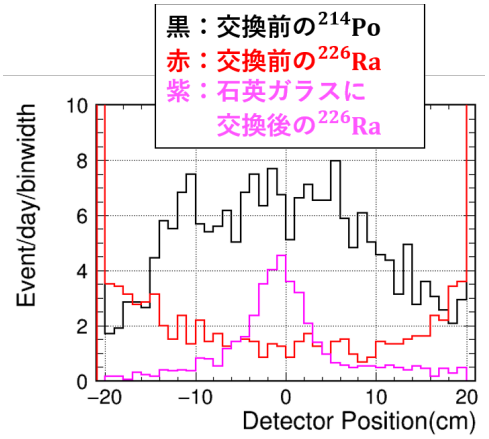

図 5.35: 石英窓交換前との比較

残りの α 線の詳細を議論することは難しいが、全ての α 線バックグラウンドは検出器タンク全体から生成されているものと考えられる。今後の対策としては、以下の 3 つが考えられている。

- よりグレードの高い電解研磨を施した容器の作製
- 検出容器壁に気体を通さない（つまり、Rn を通さない）フィルム（EVOH）を導入する。
- 1 週間ごとに純化をやり直す。もしくは、常に純化し続ける純化系を構築する。

一つ目については、新容器の作製は終わり現在進行系で試験を行っている。詳細は Appendix に記す。二つ目については、長期間液シンに浸かっても問題ないか、EVOH シートなどの評価を大阪大学が進行中である。三つ目については、大変ではあるが前者 2 つを行っても改善できない場合に必要となるだろう。

5.7.3　中性子に対する感度

本検出器から環境中性子量を算出するには、更なる Study が必要である。本項では、期待される環境中性子スペクトラムから計算した反跳エネルギースペクトラムと α 線スペクトラムを比較した。1/E スペクトラムと 2 章で説明した He-3 比例計数管から得られたスペクトラムを Geant4

Simulation で等方的に液シンに打ち込み、水素が反跳されたときのエネルギーを得る。その後、クエンチングファクターをかけて観測光量に直す。クエンチングファクターには Thomas Jagemann による 2004 年の測定を用いた。[10] それに初期純度 0.2mBq から計算される α 線スペクトラムを重ね描いた。但し、α 線量を算出する際、-0.6¡L-R Asymmetry¡0.6 による Quality cut を適用し算出している。その時の Cut Efficiency は 82.9%であったため、図 5.36 を描くときには補正している。

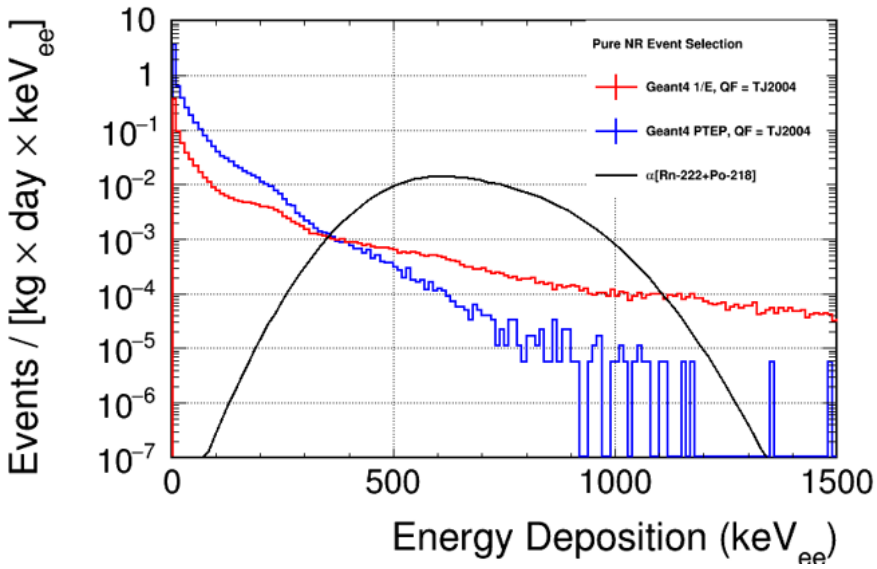

図 5.36: 期待される環境中性子スペクトラムと初期レートから算出される α 線光量分布

この結果、U 系列による評価で 300keVee 以下に感度を持つ検出器を作製できたと言える。Th 系列はいるはずだが、未考慮ではある。但し今までの測定で見えていないため存在しても絶対量は少ないと考えられるだろう。低エネルギー側は γ 線の量も多く、今後は解析的に Accidental を十分理解する必要があるだろう。

6 考察

6.1 地上環境中性子の包括的な理解

4 章の結果を受け、セットアップを新たに見直した。本セットアップでは、鉛をプラスチックシンチレータで挟んでいることで鉛直上向きから到来したミューオンをタグすることが出来る。

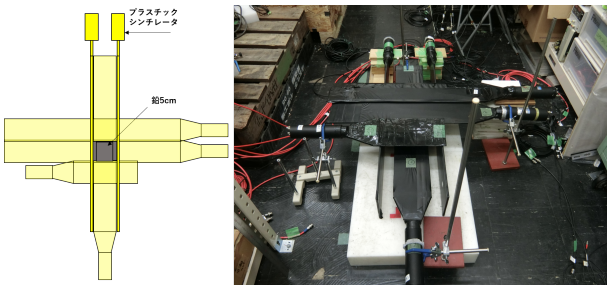

図 6.1: セットアップ（上）

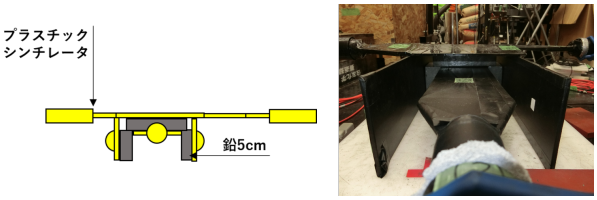

図 6.2: セットアップ（横）

トリガー条件は液体シンチレータ検出器のセルフトリガーとしている。ここで、新たな変数の定義と、既存の変数の再定義を行う。

表 6.1: 変数の定義

変数	定義
Pedestal	(-9.2,-8.8)(us) の平均値
fluctuation of L.Y.	(-10.0,-9.62)(us) の積分値
MaxVal	(-8.0,0.0)(us) の最大値
detected time(us)	(-8.0,+10.0)(us) で正方向に探索していき MaxVal の 1/2 を最初に超える時間
Δ t(us)	液体シンチレータの detected time を引いたものから プラスチックシンチレータの中で一番早い detected time を引いたもの。

液体シンチレータの detected time は基本的に-0.3(us) 周辺で発行するため、(-10,10)(us) の Time Window でデータ取得した場合は (-8.0,-0.3)(us) の 7.7(us) 分の時間差を得られることになる。なお、信号線には全て 5m 長のものを用いているため、基本的に PMT から DAQ に信号が到着する時間は同じであるが、数 10ns 程度の差が生じることがある。そのため、各 detected time をガウス分布で Fit し、液体シンチレータの時間に一致するように補正した。このとき、液体シンチレータでおよそ 4000keVee 以上のイベントを選んだ。この領域はミューオンによるイベントが大半であり、鉛を通過したときにほぼ時間差なしにシャワー事象を観測するはずである。

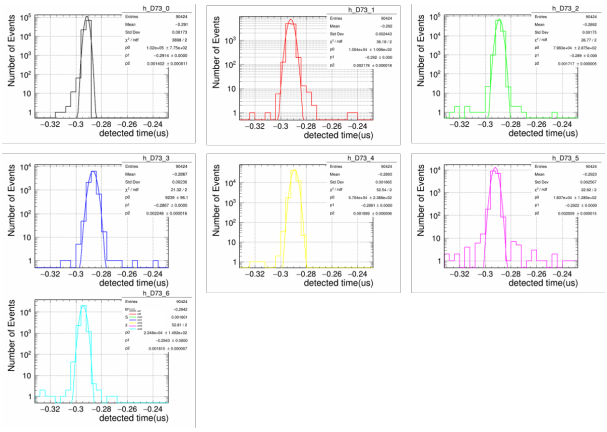

図 6.3: 補正前の detected time

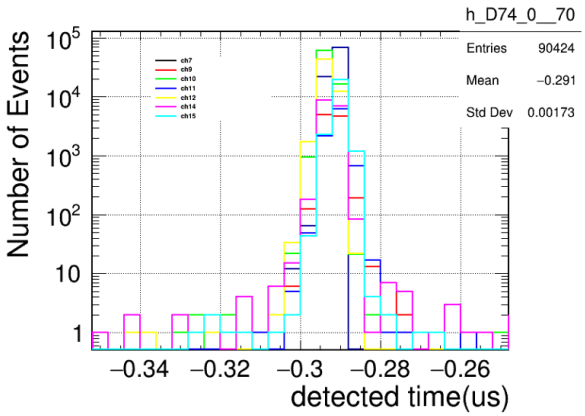

図 6.4: 補正後の detected time 時間差は+4ns 以内に収まっている

fluctuation of L.Y. について説明する。この変数は液体シンチレータでトリガーしたときにプラスチックシンチレータに信号が来たかどうかを判断するために用いる。単なるノイズであれば、0（=Pedestal）を中心として差を足し上げていくわけであるから、誤差も $\sqrt{n}$ で増えていく。そのため、Total と同じ時間分だけ積分している。その分布を以下に示す。1 つを除いてガウス分布で Fit した。1 つはダブルガウシアンで Fit した。明確な原因は不明だが、波形を確認したところおそらくライトリークによるものと考えている。このときの σ は小さい方を選んだ。そして、プラスチックシンチレータに信号が来ることを Total が fluctuation of L.Y. の 5σ を超えることとした。

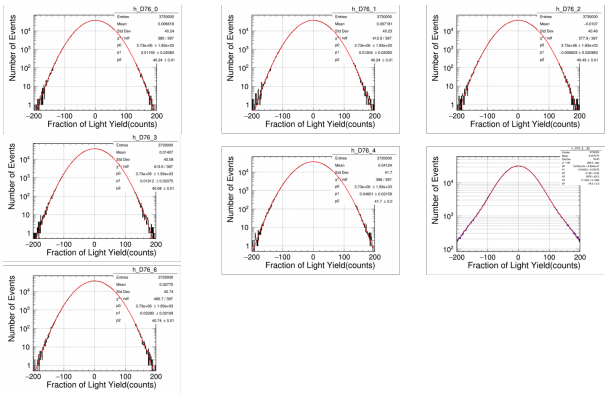

図 6.5: 液体シンチレータ検出器（左上）とプラスチックシンチレータの fluctuation of L.Y.

以上の定義から、液体シンチレータの detected time から Total が fluctuation of L.Y. の 5σ を超えたもののうち、もっとも早い detected time のプラスチックシンチレータの detected time を引いたものを Δ t と定義する。次の分布は、3.48 日取得した液体シンチレータの PSD 分布とそのときの全 Δ t 分布である。

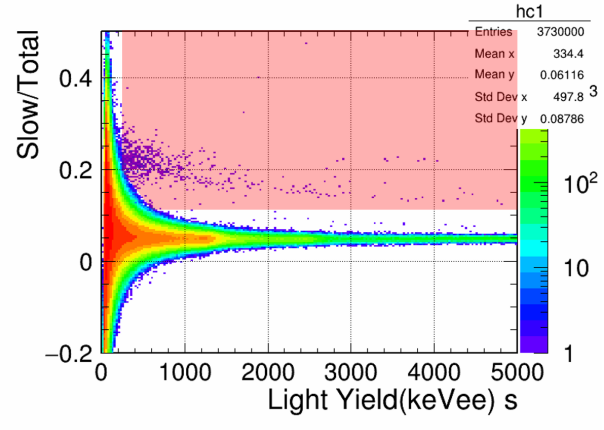

図 6.6: 3.48 日間取得した液体シンチレータの PSD 分布, 赤枠は clear Nuclear Recoil Event

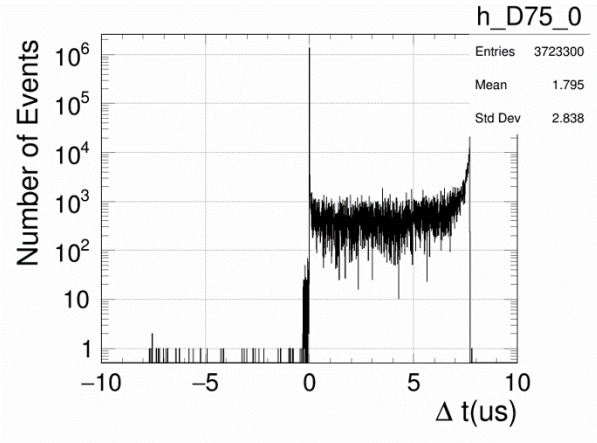

図 6.7: 3.48 日間取得した全 Δ t 分布

clear Nuclear Recoil Event を選んだ場合、Δ t 分布は以下のようになる。

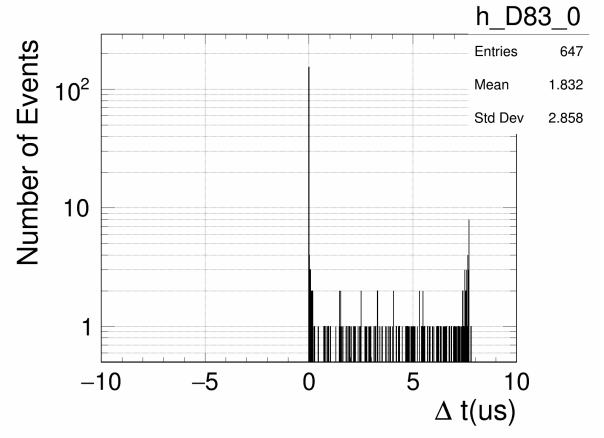

図 6.8: 全 clear nuclear recoil event

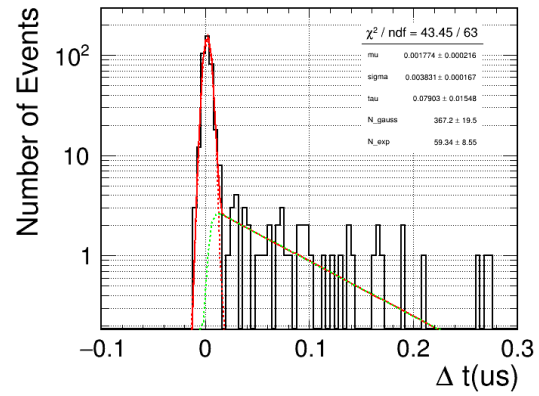

図 6.9: (-0.2,+0.5)(us) で拡大した clear nuclear recoil event

成分としては、0(us) にピークが立つものと、ある程度の時定数を持ったテール成分があるように見える。以下の数式

$$(\frac{N_1}{\sqrt{2\pi}\sigma}e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}} + N_2\frac{\lambda}{2}e^{\mu\lambda+\frac{1}{2}\lambda^2\sigma^2}e^{-\lambda(x-\mu)}\mathrm{Erfc}(\frac{\mu+\lambda\sigma^2-(x-\mu)}{\sqrt{2}\sigma})) \times Binwidth \tag{6.1}$$

で Fit を行った。Δ t=0(us) の成分を Gaussian で、Δ t=0(us) 以降にテールを持つ成分を ex-gaussian で Fit する。ex-gaussian は exponential を Gaussian で畳み込み積分した関数。Δ t 分布にいる事象は全てプラスチックシンチレータで 5σ を超えている事象であるから、0(us) にあるものは spallation の何かしらの相互作用であると推測が出来る。テール成分は 79.0±15.5(ns) の時定数を持っている。これは鉛が負ミューオンの原子核捕獲をしたときの mean-life と比較が出来て、実験値 75.4±1.0(ns) と一致している。[51] なお、全 clear nuclear recoil event にプラスチックシンチレータで挟んだ鉛を真上から貫く事象を要求すると消えることから見えたものは原子核捕獲である可能性が高い。

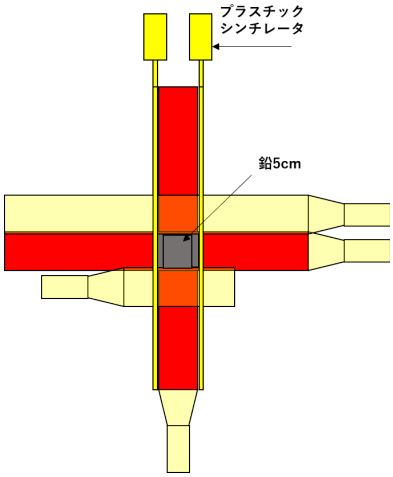

図 6.10: 鉛を貫通する事象のタグ方法

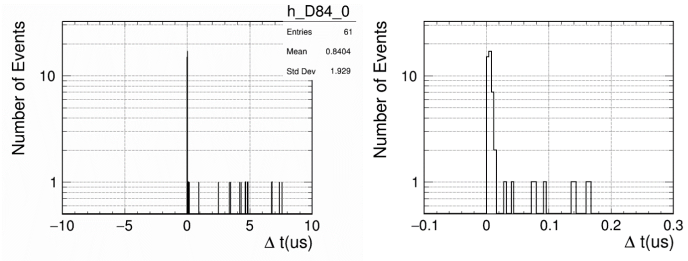

図 6.11: clear nuclear recoil event の内、鉛を貫通する事象

以上は、原子核捕獲は地上で容易に起こるため、地上暗黒物質探索実験を行うときには検出器を覆う鉛ごとプラスチックシンチレータで覆わなければいけないことを示している。再度暗黒物質探索実験を行う上で 1 つ知見を与えた。ミューオンフラックスの何%が原子核捕獲成分に影響を与えるかまで算出するには、4π のセットアップを組んだりと依然確認しなければならないことは存在する。本成分は神岡宇宙素粒子研究施設においても同様に確認できる可能性がある。宇宙線起因と岩盤起因を弁別するためにも今後は地下においても宇宙線ミューオン起因の中性子を特定する Study を進めていく予定である。

7　まとめと展望

2020 年 8 月に行われた ANKOK 実験 Run20.1 で観測された NR 事象量を説明するために、液体シンチレータを鉛とプラスチックシンチレータで囲んだセットアップでデータを取得し、宇宙線ミューオンと鉛の相互作用による中性子を測定した。結果、単純に鉛で囲むだけで中性子量はおよそ 2 倍に増加することが確認され、更に液シンとプラスチックシンチレータの時間差を見ることで Spallation 由来と Capture 由来の中性子量を測定することに成功した。今後は 4π を囲ったセットアップを作製し、シミュレーションと相互に確認することによってミューオンフラックスに対する中性子生成量の理解や Run20.1 で観測された NR 背景事象の subtract が出来ることが期待される。神岡宇宙素粒子研究施設で、地下環境中性子測定に向けた低 BG 検出器の作製と評価を行った。まず、内面を電解研磨し PMT を両読みにした検出器を作製した。そして、純化装置で液シンの液液抽出を行った。結果、1 回目の測定では大気 Rn が混入し α 線 BG が多く見られるようになってしまったものの、それを用いて Bi-Po の delayed coincidence が容易になり Rn-222、Po-218、Po-214 の 3 つのガウシアンで α 線がよく理解できることが示された。また、PMT が両読みになったことで左右の PMT の光量比（＝ L-R Asymmetry）を定義し、大気 Rn の α 線レートが落ち着いたところで確認するとガラス窓が α 線源と特定することが出来た。以上を踏まえて 2 回目の測定に臨んだ。一般に低放射性不純物な石英窓に交換して、部材も超音波洗浄した。そして 1 回目とは異なり外気に触れず純化可能な系で液液抽出を行った結果、初期の α 線レートで 0.2mBq/4kg のレートを得ることが出来た。その後増加はしていったものの、初期純度としては綺麗な結果であった。Rn-222 の半減期とコンシステントな値で増加していくことから、最後の BG 源は検出器容器本体であることが予想された。今後はスーパーカミオカンデの Rn 計で使用されている研磨と同じ複合電解研磨を施した検出器を作製することによってさらに 100 分の 1 の α 線量が見込めるはずであり、作製を進めている。但し、現段階においても 300keVee 以下では十分中性子測定感度を持つ検出器であることは期待されている。

8 謝辞

まずは、研究のきっかけ及びモチベーションを与えてくださった寄田教授に感謝致します。映画を見て「これがお前の作りたい検出器だろ！」と鼓舞してくださったのは嬉しかったです。また、会社でも山を見いだせるように頑張りたいと思います。田中准教授は普段から学生を気にかけて声をかけてくださり、困ったときは的確にアドバイスをくれました。最も細かく研究指針を調整してくれました。これが無ければ迷うことも多かったと思います。駒宮上級研究員は理論ゼミでお世話になりました。教科書の話を書物として読むのではなく体験記として聞けるのは貴重な経験でした。蛯名招聘研究員にはシステム係の業務でお世話になりました。私の研究では長期間のデータを必要としますが、蛯名氏のご協力なしでは適切な保存環境すら用意できなかったと思います。それと、システム係の打ち上げでいく焼肉は美味しかったです。坂本秘書には多くの出張手続きや備品の購入を補助していただきました。また、ANKOK 実験の Run 開始時には野菜ジュース提供のお心遣い頂きありがとうございました。

三谷助手には、私が初めての物理学会でまるで出来ていないところに、幾度も発表の仕方を細かく教えていただき助かりました。珈琲も美味しかったです。ブルースカイビーンズ行ってみます。木村助手には、DAQ や解析手法関連でお世話になりました。木村氏無くしては、神岡で一人でデータを取ることは出来なかったでしょう。鷲見氏には学部学生の頃、後ろの席だったこともありよく面倒を見てもらっていました。博士号を取得して卒業されてからも神岡関連の研究でお世話になりました。1 つ上の代の青山氏、植原氏、武田氏、鶴田氏とは気軽に相談することできる関係で、大変お世話になりました。昨年の 11 月の、研究に対する熱意が無くなった時はやる気を取り戻させてくださり感謝しています。

同期の伊藤氏、諸星氏、岩澤氏とは気軽に話せてストレス解消になっていました。修士も最後の方ではよく刺激を受けていました。また近況報告飲み会しましょう。最近の伊藤氏は気合が入っていて別人のようです。博士課程に行っても頑張ってください。修士 1 年の後輩とは、脳内のスイッチを切り替えた愉快な飲み会ができて良かったです。学士 4 年の後輩にもお世話になりました。櫻井氏と中曽根氏のバイタリティには度々驚かされていました。そのほか研究室の方々とのなんとはなしの会話の時間もリフレッシュになっていました。

本研究は、神岡宇宙素粒子研究施設の様々な方々のご協力があったからこそ成り立っていたものです。多くの方がおりますため皆様方の氏名を挙げるのは控えさえていただきますが研究の方向性の相談から実験装置、実験環境の提供まで大変お世話になりました。また、実験機器を作製できたのは複数の企業のご尽力あってこそです。感謝致します。最後に、肉体面、精神面の両方で支えてくれた家族に深く感謝したいと思います。本当にありがとうございました。

A　複合電解研磨を施した次代の液体シンチレータ検出器容器

節 2.1 及び、節 5.1 に記した通り、放射性の希ガスである Rn は U/Th 系列から生成され、地下実験における主要なバックグラウンドとなる。そのため、神岡宇宙素粒子研究施設は高感度な分析が可能なラドン検出器の開発に取り組み続けている。作製されている Rn 計は静電捕集型の検出器である。気体の Rn が崩壊したときに放出される帯電した娘核（Po-218 ならば 90% 以上が帯電 [44]）が静電場により PIN フォトダイオードに収集され、そこで放出される α 粒子のエネルギーを測定するものである。80L Rn 検出器 [45] は 1999 年に開発された 700L Rn 検出器 [46] と同じ電解複合研磨（'Grade MC' electro-chemical buffing）を施している。この技術は Ultra Finish Technology Co. Ltd.（日本語名：日造精密研磨株式会社）[47] の技術である。80L Rn 検出器は roughness 0.8um 以下を要求するものであり、この結果、intrinsic なバックグラウンドレベルは Po-214 で 0.74±0.07 counts/day であることが分かっている。[48] この検出器の形状と体積は以下の図の通りで、

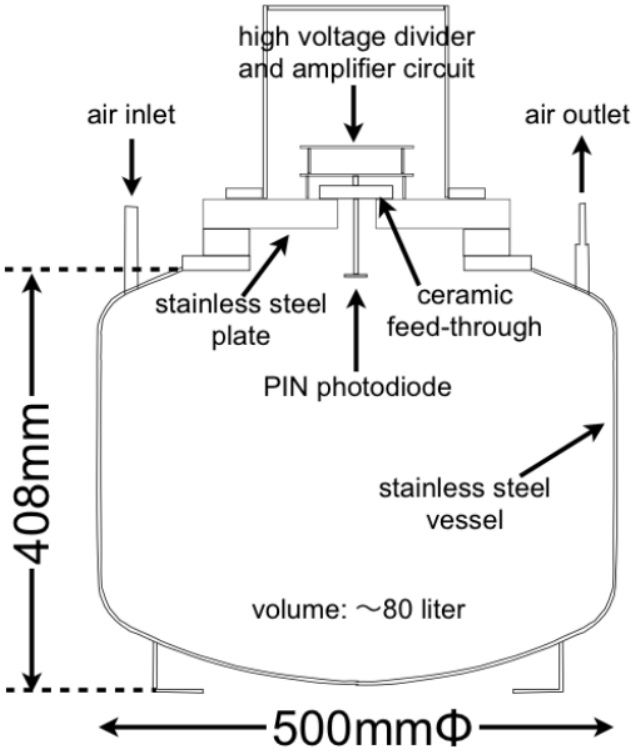

Figure 1. Schematic view of the 80L radon detector

図 A.1: 80L Rn 検出器の図 [49]

表面積を計算すると、$2\pi \times 25\text{cm} \times 41\text{cm}$（側面）と $\pi \times 25\text{cm} \times 25\text{cm}$（底面）$\times 2$ は約 10,000 cm^2 である。ここで、作製した「複合電解研磨を施した次代の液体シンチレータ検出器容器」は 5 章で使用した液体シンチレータ検出器と同形状なものに電解複合研磨を施したもの（roughness の保証値は 0.4um）であるから、底面の石英窓の表面積分を考慮しなければ、側面だけを考慮して $\pi \times 7\text{cm} \times 30\text{cm}$（側面）より約 1,300 cm^2 である。そこで、Rn 計の intrinsic なバックグラウンドレベル 0.74 counts/day が容器からの染み出しのみによるものと仮定して液体シンチレータ検出器容器で達成できた場合、表面積で換算して $0.74 \times 0.13 = 0.0988$ counts/day になる。mBq 単位に直すと 0.00113 mBq = 1.13 μBq になる。これは、現低バックグラウンド液体シンチレータ検出器の初期純度である 0.2 mBq と比べておよそ 177 分の 1 になる計算である。これと、5 章の結果を比較

すると、α 線は 100 分の 1 になれば中性子量と同程度であるから次代の液体シンチレータ検出器は中性子量以下の α 線量を達成できることが分かる。S/N で 1 程度になれば、単純な Slow/Total の一次元分布を γ 線、中性子、α 線の 3 成分のガウシアンで Fit して、量を算出することが出来るだろう。なお、80L Rn 計で得られる α 線スペクトラムは文末の参考文献先で参照可能である。[50] 作製したステンレス容器は現行とほぼ同じ形状をしている。ダクト部の図面を載せておく。

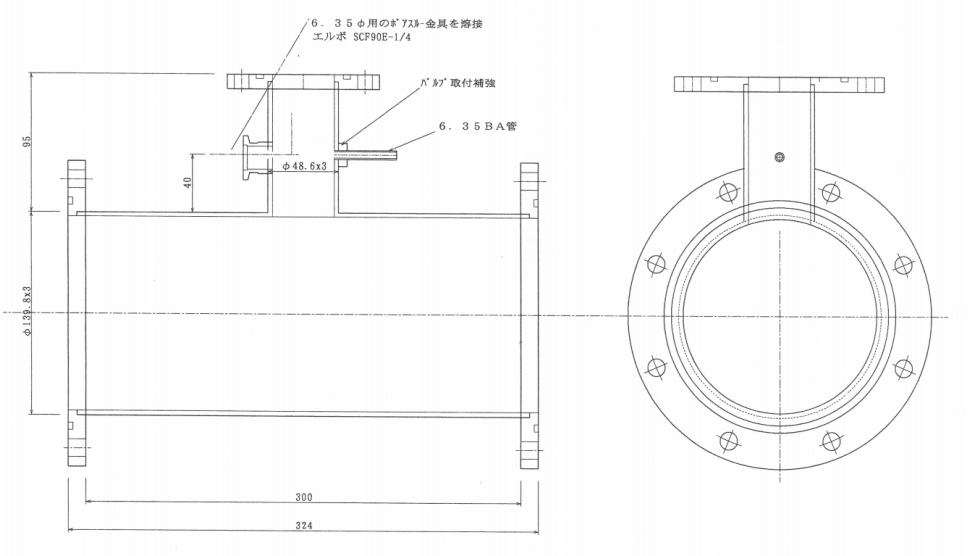

図 A.2: 次代の液体シンチレータ検出器（ダクト部）

フランジ部は製作時に起きた様々な都合で仕様が左右で異なっており、片方は直接石英窓が液体シンチレータに触れるが、もう片方は電解研磨していないステンレス面が一部触れたのちに石英窓に触れる構造になっている。

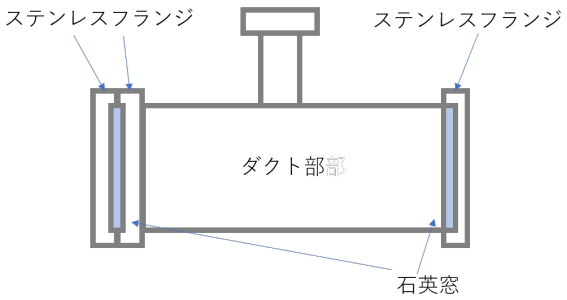

図 A.3: 検出器容器フランジ部ポンチ絵

この検出器を用いて 3 月 5 日から 3 月 10 日まで測定開始作業を行った。早稲田大学で超音波洗浄したステンレス容器を EVOH シートに入れた状態で神岡に持ちこみ、そこで純化を行った。エネルギーキャリブレーションは Cs-137 の Back Scatter 法で行った。また、Back Scatter 時の Setup をそのまま左右に移動させて位置依存性データを取得した。検出器位置と L-R Asymmetry の関係は相互誤差関数で Fit した。L-R Asymmetry と光量の関係は pol2 で Fit した。

$$\frac{max-min}{2.0}TMath::Erfc(\frac{x-x_0}{\sqrt{2}\sigma})+min\ ,\text{where TMath :: Erfc(x)}\ =\ \int_x^\infty \mathrm{e}^{-t^2}dt \qquad (A.1)$$

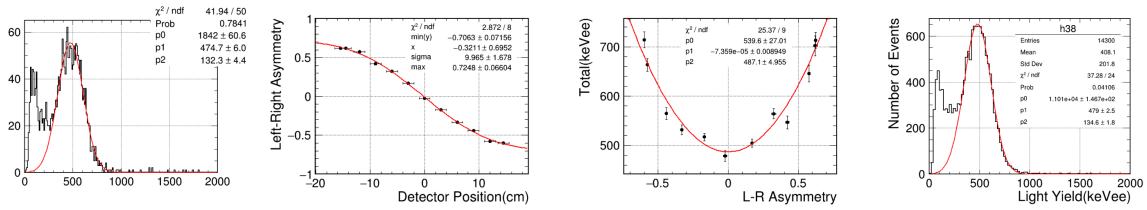

図 A.4: 左から、検出器中心に線源を設置したとき、検出器位置 vs L-R Asymmetry、L-R Asymmetry vs 光量、全位置依存性データを pol2 で fit した関数で補正した光量分布

L-R Asymmetry の cut による検出器位置内の発光と、dt<500(us) 以内を要求した PSD 分布を確認する。純化数時間後から 15 時間分の PSD 分布を見ると、α 線は少ないことが分かる。なお、slow/total が大きい領域にまばらに事象がいるのは鉛を積んでいないためである。約 9 日経過後の 23 時間分の PSD 分布を見ると、α 線が増加していることが分かる。このときには鉛を積んでいる。

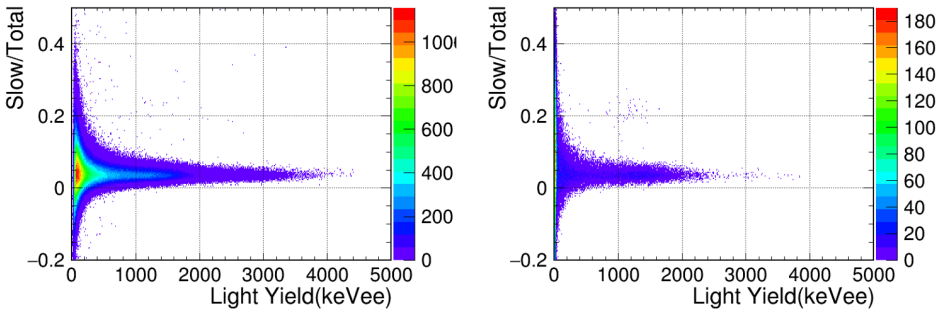

図 A.5: (左) 純化数時間後の分布、(右) 純化から約 9 日経過後の分布

一番最初のデータ点は、slow/total 分布で BiPo 2σ 以内の事象をカウントした後に、Flat background と思って slow/total$\in$(0.3,0.5) の事象数を 2σ 領域の事象数に換算して引いた。残りのデータ点は、slow/total 分布でのガウシアンフィットから算出した。

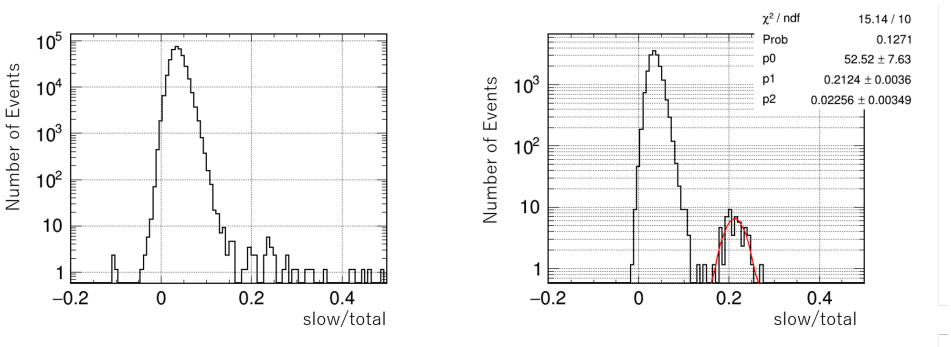

図 A.6: (左) 純化数時間後の分布、(右) 純化から約 9 日経過後の分布

レートを追っていき、節 5.7.1 と同じ関数でフィットした。但し、constant なレートのみをフリーパラメータとして、それ以外を全て fix した。ラドン起因だと思うと、定常状態では 1.04 [mBq] となる。予想より多い結果であるのは残念ではあるが 1.3 [mBq] よりは低い値となった。今後は統計を貯めた状態で改めて湧き出し源を特定、改良していく必要がある。

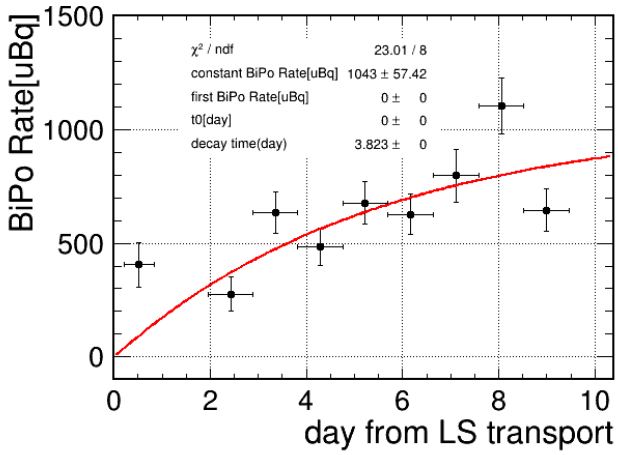

図 A.7: α 線レートの変化

参考文献

[1] 鈴木優飛、早稲田大学修士論文（2016）p.36,pp.37-48

[2] SAINT-GOBAIN BC-501,BC-501A,BC-519,Liquid Scnintillators https://www.crystals.saint-gobain.com/sites/imdf.crystals.com/files/documents/bc501-501a-519-data-sheet.pdf

[3] T. Sato, Analytical Model for Estimating the Zenith Angle Dependence of Terrestrial Cosmic Ray Fluxes, PLOS ONE, 11(8): e0160390 (2016)

[4] T. Sato, Analytical model for estimating terrestrial cosmic ray fluxes nearly anytime and anywhere in the world: Extension of PARMA/EXPACS, PLOS ONE, 10(12): e0144679. (2015)

[5] EXPACS http://phits.jaea.go.jp/expacs/

[6] 鈴木優飛、第 3 回 B02 班若手ミニ研究会、http://ppwww.phys.sci.kobe-u.ac.jp/~newage/workshop/B02_20150517_18/slides/suzuki.pdf

[7] 横山寛至、第 3 回 B02 班若手ミニ研究会、http://ppwww.phys.sci.kobe-u.ac.jp/~newage/workshop/B02_20150517_18/slides/yokoyama.pdf

[8] 小林兼好、第六回極低放射能技術研究会、https://www.lowbg.org/ugap/ws/lb2020/slides/kobayashi-200604-alphacounter.pdf

[9] 伊藤博士、第六回極低放射能技術研究会、https://www.lowbg.org/ugap/ws/am2020/slide/20200603_7-2.pdf

[10] Thomas Jagemann, “Measurement of the Scintillations Light Quenching for Nuclear Recoils induced by Neutron Scattering in Detectors for Dark Matter Particles”, 2004

[11] https://www.kenmaya.co.jp/reading/b_arasa.html , 研磨屋 - 小林研磨工業- 2021 年 1 月 10 日閲覧

[12] https://www.sqp.co.jp/catalog/images/Technology_Guide1_j.pdf, 石英ガラス技術ガイド, 信越石英株式会社, 2021 年 1 月 10 日閲覧

[13] Keita Mizukoshi et al., Measurement of ambient neutrons in an underground laboratory at the Kamioka Observatory, PTEP, 2018, 123C01, DOI: 10.1093/ptep/pty133

[14] 文部科学省,「中学生のための放射線副読本」, https://www.mext.go.jp/b_menu/shuppan/sonota/attach/1314222.htm, 2021 年 1 月 11 日閲覧

[15] J.M.Carmona,Neutron background at the Canfranc underground laboratory and its contribution to the IGEX-DM dark matter experiment, Astroparticle Physics, Volume21, Issue5, 2004

[16] A.Lindote, Simulations of neutrons produced high-energy muons underground, Astropart.Phys.31:366-375,2009, DOI: 10.1016/j.astropartphys.2009.03.008

[17] T.Luu, C.Hagmann, Nov. 22, 2006 Neutron Production by MuonSpallation I: Theory, UCRL-TR-226323

[18] D.F.Measday, The nuclear physics of muon capture, Physics Reports 354 (2001) 243-409, https://www.phy.bnl.gov/~djaffe/MINOS/References/mu_capture_PhysRep354.pdf

[19] Oliver Markus Horm, Simulations of the muon-induced neutron background of the EDELWEISS-II experiment for Dark Matter search, Zur Erlangung des akademischen Grades eines DOKTORS DER NATURWISSEENSCHAFTEN von der Fakultät für Physik der Unibersität Karlsruhe(TH), 21th,Dec,2007, https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/39/084/39084527.pdf?r=1

[20] M.AGLIETTA et al., Neutron Flux Generatad by Cosmic-Ray Muons at 5200hg/cm^{2}s.r. Underground. Depth-Neutron Intensity Curve., IL NUOVO CIMENTO C 12, 467-477(1989), https://link.springer.com/article/10.1007/BF02525079

[21] Yukata Yamagata, 中性子と精密工学, 精密工学会誌 2013 年 79 巻号 p.805-808, https://www.jstage.jst.go.jp/article/jjspe/79/9/79_805/_pdf/-char/ja

[22] I.Abt et al., The muon-induced neutron indirect detection EXperiment, MINIDEX, Astroparticle Physics 90(2017) 1-13, https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0927650517300427?via%3Dihub

[23] R.Hertenberger, M.Chen, B.L. Dougherty, Muon-induced neutron and pion production in an organic liquid scintillator at a shallow depth, PHYSICAL REVIEW C VOLUME 52 NUMBER 6, DECEMBER 1995

[24] アイソトープ手帳 11 版、公益社団法人日本アイソトープ協会、丸善出版株式会社、平成 26 年 3 月 20 日、ISBN978-4-89073-211-1 C3040

[25] Naoki Onuma, 特集 自然環境と化学 地殻の元素存在度, 化学教育 20 巻 (1972)3 号, https://doi.org/10.20665/kagakukyouiku.20.3_163

[26] 大谷航, 東京大学理学系研究科修士論文 (1994)

[27] A.Rindi et al, Nucl. Instr. and Meth. A 272(1988) 871

[28] 帝釋稜介, 神戸大学修士論文 (2017)

[29] M.Kowatari et al, J. NuCl. Sci. Technol. 42(2005) 495-502

[30] T.Naramura et al, J. Nucl. Sci. Techno. 42(2005) 843-853

[31] 菅沼亘, 東京大学理学系研究科修士論文 (2002)

[32] 南野彰宏, 東京大学理学系研究科修士論文 (2004)

[33] 水越彗太, 大阪大学理学研究科修士論文 (2019)

[34] The MINOS Collaboration, Observation of muon intensity variations by season with the MINOS far detector, Phys.Rev.D81:012001,2010, DOI:10.1103/PhysRevD.81.012001

[35] IAEA-Nuclear Data Section, Live Chart Of Nuclides, https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html

[36] J.R. Verbus et al., Proposed low-energy absolute calibration of nuclear recoils in a dual-phase noble element TPC using D-D neutron scattering kinematics, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 851(2017)68-81, https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.01.053

[37] R.F. Lang, et al., Charcterization of a deuterium-deuterium plasama fusion neutron generator, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 879(2018)31-38, https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.10.001

[38] Jianguo Qin et al., Characterization of BC501A and BC537 liquid scintillator detectors, Applied Radiation and Isotopes 104(2015)15-24, https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2015.06.008

[39] N.P. Hawkes et al., Measurements of the proton light output function of the organic liquid scintillator NE213 in several detectors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 476(2002) 190-194, https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01429-2

[40] E.V. Pagano et al., Pulse shape discrimination of plastic scintillator EJ299-33 with radioactive sources, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 889(2018)83-86, https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.02.010

[41] F. Zwicky, Spectral displacement of extra galactic nubulae, Helv. Phys. Acta 6(1933), 110-127

[42] S.Osprey et al., Sudden stratospheric warmings seen in MINOS deep underground muon data, 07 March 2009, https://doi.org/10.1029/2008GL036359

[43] G.Pronost et al., Developmen of new radon monitoring systems in the Kamioka mine, Prog. Theor. Exp. Phys. 2018, 093H01, DOI:10.1093/ptep/pty091

[44] P.Kotrappa et al., Health Phys., 46, 35(1981).

[45] K.Hosakawa et al., Development of a high-sensitivity 80L radon detector for purfied gases, Prog. Thoer. Exp. Phys. 2015,033H01, DOI:10.1093/ptep/ptv018

[46] C.Mitsuda et al., Development of super-high sensitivity radon detector for the Super-Kamiokande detector, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 497(2003)414-428,https://doi.org/10.1093/ptep/ptv018

[47] UFT 日造精密研磨株式会社、http://www.uft.co.jp/product/、2021 年 1 月 21 日閲覧

[48] Y.Nakano et al., Measurement of radon concentration in super-Kamiokande's buffer gas, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 867(2017) 108-114, http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2017.04.037

[49] K.Hosokawa, Development of a high sensitivity radon detector for purified gases, Journal of Physics: Conference Series, 469 012007, https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1742-6596/469/1/012007/pdf

[50] 神戸大・理　竹内康雄、細川佳志、大西洋輔　岐阜大・総合情報メディアセンター　田阪茂樹 ICRR 神岡施設　関谷洋之、ICRR 共同利用研究成果発表会 2013 年 12 月 21 日、http://www.icrr.u-tokyo.ac.jp/prwps/info/workshop/2013/kyodoriyo/pdf_21dec2013/07.pdf

[51] T.Suzuki, D.F. Measday, J.P.Roalvig, Total nuclear capture rates for negative muons, PHYSICAL REVIEW C VOLUME 35 NUMBER 6 JUNE 1987, https://doi.org/10.1103/PhysRevC.35.2212

[52] V.V.VERBINSKI et al., CALIBRATION OF AN AN ORGANIC SCINTILLATOR FOR NEUTRON SPECTROMETRY, NUCLEAR INSTRUMENTS AND METHODS 65(1968) 8-25, https://doi.org/10.1016/0029-554X(68)90003-7

[53] 和田佳樹, 東北大学理学部物理学科卒業論文 (2018)

[54] Jérôme M. Verbeke, Chris Hagmann, Doug Wright, Simulation of Neutron and Gamma Ray Emission from Fission and Photofission. LLNL Fission Library 2.0.2., Lawrence Livermor National Laboratory October 24,2016, UCRL-AR-228518-REV-1, https://nuclear.llnl.gov/simulation/fission.pdf

[55] 大浦智也, 東北大学大学院理学研究科修士論文（2015）

[56] 吉岡勝廣、飯田孝夫、大気中ラドン濃度の周期性長期変動の主要な影響因子ー海洋と陸地の違いー、保険物理,42(1),53̃62(2007), https://www.jstage.jst.go.jp/article/jhps1966/42/1/42_1_53/_pdf

学籍番号: 5319A016-2

研究活動の不正行為　定義確認書

2021年 2月 6日

早稲田大学大学院先進理工学研究科長　殿

早稲田大学大学院先進理工学研究科

物理学及応用物理学 専攻　2 年

本人氏名 小津龍吉

（自署）

私は、裏面に記載のある研究活動の不正行為に関する定義を理解し、修士論文提出において、不正行為または不正行為と疑われる行為を一切行っていないことを誓約します。なお、当該行為を行なうと、厳重な処分（無期停学・当該学期成績無効・修士論文不合格等）を受けること、学位取得後であっても学位取消となることを十分に認識した上で、論文を執筆しました。

研究倫理教育受講確認書

2021年 2月 6日

本人氏名 小津龍吉

私は、修士論文の執筆にあたり、以下の研究倫理教育を受講しました。

✓	GEC 設置科目「研究倫理概論」の受講
	専攻設置科目の受講　科目名（　　）
	その他（　　） ※受講前に指導教員を通じて専攻主任の承認を受けること。 ※受講証明を添付すること。

研究活動の不正行為（捏造、改ざん、盗用、剽窃）について

修士論文を作成するに当たっては、以下の点に十分留意してください。

◆既存の文書・資料や自ら取得したデータ等に関し、「捏造・改ざん」は絶対に行ってはいけません。
これらの行為は、社会人はもちろん、学生であっても当然守らなくてはならないルールです。

※捏造：事実でないことを事実のように仕立て上げること。でっちあげること。
※改ざん：文書やデータ等の全部あるいは一部を、故意に本来のものでない内容・形式・時期等に変更すること。悪意の有無は問わない。

◆学問の体系に新たな知見を加えるとき、その信頼性は命です。学術研究でも、そのための対応が求められます。そこでは上記に加え、資料・データ等の適切な利用と管理、情報取得に当たってのインフォームドコンセントの適用、取得した個人情報の保護等に配慮しなければなりません。
他人の著作物（書籍や論文などに加え、講演での発言やインターネットに掲載された文章・図表・データ等も含む）を活用する場合には、「盗用・剽窃」に十分配慮してください。
盗用・剽窃は、著作権法で禁止された行為です。社会人はもちろん、学生であっても当然守らなくてはならないルールです。

※盗用・剽窃：引用元を適切に記載せずに、他人の文章、結果、意見、アイデア、理論、学説などを自分のものとして発表すること。

◆学問の発展は独創性・独自性が基盤です。初めにそれを公表した人のオリジナリティを尊重し、敬意を払うことは学問の府に身を置く者の当然の責務です。学術論文においても、自分の考えと他人の意見を明確に区別し、表現しなければなりません。
このためには、適切な「引用」が重要です。学術論文では、他人の意見・アイデア・理論などを参照・参考にした箇所ごとに番号を付け、巻末や脚注で、その出所を明らかにすることが一般的です。学会等によって、その記載順序が若干異なりますが、以下を標準にします。

・論文・総説：著者、題名、掲載誌名、巻号、ページ、発表年（月）等
・国際会議・シンポジウム・口頭発表：著者、題目、シンポジウム等の名称、場所、年月、巻号、ページ、出版元、出版年等
・著書：題目、著者、ページ、出版元、出版年等
インターネットのからの引用では、以下の通りとします。
・著者、タイトル、URL、検索日

◆プレゼンテーション用のパワーポイントでは、上記の引用方法を簡略化して用いることを認めます。簡略化の原則は確認・参照の容易性です。例えば、論文からの引用では、著者、掲載誌名、発表年月のみの記載を認めます。著書や論文、インターネットなどの文章をそのまま記載する場合は、「」を付け、その文章を誰が公表しているかを明示するのが一般的です。