

Master thesis Abstract

Extreme Reduction of Radioactive Impurities in KamLAND liquid scintillator by using a Metal Scavenger

Tohoku university KAMEI Yuto

1 研究の背景・目的

ニュートリノ振動の観測でニュートリノが質量を持つことが証明され、ニュートリノのマヨラナ性によって軽い質量を説明する理論の重要性が高まった。ニュートリノのマヨラナ性を証明するにはニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) の観測が現状唯一の方法であり、世界各地で様々な実験が行われている。KamLAND-Zen 実験は崩壊核 ^{136}Xe を用いて $0\nu\beta\beta$ 事象の探索を行う実験である。1,000 ton の液体シンチレータ (LS) と 1,879 本の光電子増倍管を用いた巨大検出器 KamLAND にインナーバルーンと Xe を溶解させた LS を導入することで、低放射能環境の下で $0\nu\beta\beta$ の観測を行っている。現在 ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ の半減期に $T_{1/2}^{0\nu} > 1.07 \times 10^{26}$ yr (90% 信頼度)、ニュートリノのマヨラナ有効質量に $\langle m_{\beta\beta} \rangle < (61 - 165)$ meV (90% 信頼度) の制限を与えており、世界最高の感度を達成している [1]。しかし、未だ $0\nu\beta\beta$ 信号の観測はできておらず、マヨラナ性の証明には至っていない。そこで、検出器に様々な改良を施すことでエネルギー分解能を向上させ、 $0\nu\beta\beta$ 信号の観測を目標とした KamLAND2-Zen 実験が計画されている。また、感度向上には $0\nu\beta\beta$ 観測に有効な低バックグラウンド体積の拡張が重要であり、検出器の極低放射能環境が必須である。本研究では新しい LS 純化法を実現し、低バックグラウンド体積を ~ 1.3 倍に拡張して $0\nu\beta\beta$ の半減期に対する感度を 13 - 29 % 向上することを目指した。

2 新しい LS 純化法に関する先行研究

低バックグラウンド体積の拡大に寄与する ^{214}Pb - ^{214}Bi 遅延同時計測による ^{214}Bi 事象の排除を行うには、背景事象源となる LS 中の ^{210}Pb を現状の 1/10 程度まで低減しなくてはならない。すでにいくつかの LS 純化法は確立されているが達成できていないこの課題に対して先行研究ではメタルスカベンジャーと呼ばれる金属吸着剤を使用した純化法が着目され、使用吸着剤の選定、純化における最適条件の選定を行い実験室規模で最大 98.3 % の鉛除去率を確認した [2]。そこでこの純化機構を KamLAND へ導入す

ることを想定し、実機純化装置の設計が進められた。実際の純化を行うには、高い除去率を実現する以外にも LS としての重要な性質である光透過率、発光量の減少や他の放射性不純物量増加がないことが確かではなならない。

本研究では、90 % 以上という高い鉛除去率を維持しつつ、大型化した実機純化装置によるメタルスカベンジャーを用いた LS 純化が可能かを検討した。

3 新純化法による LS の性能保証

メタルスカベンジャーはシリカゲルを基材とした金属吸着能力を持つ吸着剤であり、関東化学社製の R-Cat-Sil AP を用いる。本研究ではカラム法による実機純化装置を構築し、KamLAND を想定した純化環境を再現し純化を試みた。カラム法とは直管型カラムにメタルスカベンジャーを充填し、ポンプを用いて LS を純化層に流し込む純化手法であり、純化時間の短さやコストの低さが特徴である。図 1 に構築した純化装置の設計を示す。

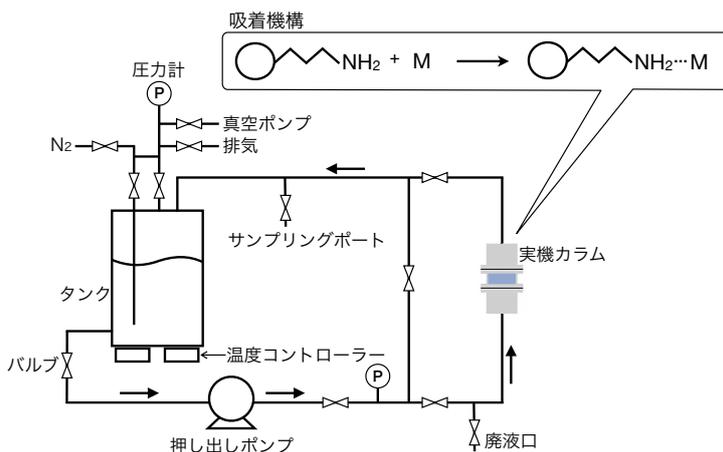


図 1: KamLAND を想定して構築したカラム法による実機純化装置の設計図。実機カラムにはメタルスカベンジャー ~ 60 g を充填できる。また KamLAND の液温を再現するためにベルチェ温度コントローラを備えている。矢印は液の流れを示す。吸着機構の M は金属、o に官能基がついたものがスカベンジャー分子を表す。

この装置は 130 L/hr 以上の大流量で送液が可能で、現在使用中である Xe を溶かした LS の格納容器の体積 30 m³ を 10 日前後という早さで純化することが可能となる。そこ

で格納容器内のLSを総純化することに相当する130 L/hrでLABを循環させた9.6日間の純化を実際に行い、純化後のLSの性能を確認した。循環の影響も考慮した最終的な結果を表1に示す。LSの最も重要な性能である光透過率、発光量に関してはいずれも純化前後で変化はなかった。表中のPPOとはLSに添加する発光剤のことであり、発光量に影響するためメタルスカベンジャーにより吸着されないことが重要である。通液初期は吸着が見られるものの10 L程度の通液後には吸着が飽和するとみられ、それ以降は成分を変えることはなかった。また、成分の溶出についてはメタルスカベンジャーの吸着部(リガンド)が加水分解によって脱落したものであることを確認した。リガンドの脱落は従来から懸念されていたが疎水性のLS中では加水分解が進まないため、10 L程度の通液後にはリガンドの検出されなくなることを確認した。放射性不純物量に関しては自然に存在するU、Th、 ^{40}K の混入が懸念される。 ^{40}K 、Uについてメタルスカベンジャーがもともと含有している量がそれぞれ 2.1×10^{-16} g/g、 1.2×10^{-15} g/gでありKamLAND-Zen400実験でLSに存在したこれらと同程度であることから溶出は問題ないと判断した。一方、Thはメタルスカベンジャーによる純化後のLSで 10^{-15} g/g以下という量であったがKamLANDの要求する感度に1桁足らなかった。その他の性能に関してはすべて要求を満たす結果が得られ、メタルスカベンジャーによる純化でLSの性能低下を招かないことを示した。

表 1: KamLAND 規模の純化が行われた後のLSの性能

光透過率	0.24%以内で変化なし
発光量	前後比にして 0.99 ± 0.02
放射性不純物量	^{40}K 、Uは十分少量 Thは 10^{-15} g/g以下の含有量
成分変化	PPO吸着、成分溶出あり いずれも ~ 10 Lの通液で改善

続いて、主題である鉛の除去率に関しては最大93.7%、1回の純化では 88.3 ± 4.0 %という結果を得た。低バックグラウンド体積拡張のための目標は90%以上の除去であるため、メタルスカベンジャーを用いた純化の有用性を示す結果である。

鉛を含有させたLSは ^{220}Rn をLSに吹き込むことで溶解させ、その後の崩壊によって ^{214}Pb を蓄積させる手法で作成した。測定はBi-Po遅延同時計測により行い、除去率を算出した。メタルスカベンジャーの金属吸着は化学的な機構によるものであるため、使用した鉛 ^{214}Pb とKamLANDでの除去ターゲット ^{210}Pb との実質的な差はない。

また、カラム法による純化での除去効率は流量に依存し、高流量では除去率が低下することが知られている。そこで流量を変化させて行った純化の結果を図2に示す。各流量で4回の純化を実施しており色分けして示している。

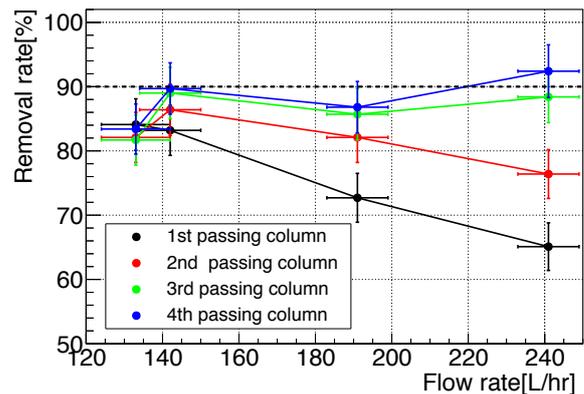


図 2: 様々な流量における鉛除去率。数回の純化で目標除去率を達成することが分かる。

4回の純化を行うといずれの流量においても除去率は ~ 90 %に到達することが分かる。また、流量が比較的小さい方が1回での純化で収束値に近い除去率が得られた。実際のオペレーションでは少ない回数で目標除去率に達する方が早く実験を開始することに繋がり有利であるため ~ 150 L/hrでの純化が最適である。現状のKamLAND設備を考慮してもこの値は現実的である。

4 今後の展望

メタルスカベンジャーを用いて実機純化装置で純化したLSは光透過率、発光量、成分変化について要求を満たすと共に鉛の除去率は目標である90%を達成し、KamLAND2-Zen実験の極低放射能化の実現をより現実的にすることができた。また、LSの成分保持のために通液初期の10 L程度は実験に用いるべきではないことや純化に最適な流量に関してなど実際のオペレーションについて有益な情報を得ることができた。純化後のLSの放射性不純物量についてはより高感度の測定を必要とする。またより少ない純化回数で高い除去率を安定して得られるようにメタルスカベンジャーを増量した改良カラムによる純化を試みている。

この新しいLS純化法を実現することで低バックグラウンド体積を ~ 1.3 倍に拡張して感度を13–29%向上できる。KamLAND2-Zenで計画されている他の改良も考慮し、1,000 kgの ^{136}Xe を用いて5年間観測を行うことで $0\nu\beta\beta$ の観測を目指し、ニュートリノのマヨラナ有効質量にして20 meVまでの探索を目標とする。

参考文献

- [1] KamLAND-Zen Collaboration, A. Gando *et al.*, Phys.Rev.Lett., 117, 082503 (2016)
- [2] 寺岡夕里 修士論文「金属スカベンジャーによるKamLAND-Zenの低放射能化に関する研究」東北大学 平成28年