

博士論文

液体キセノンシンチレータの発光波長の精密測定 (High-accuracy measurement of the emission spectrum of liquid xenon scintillator)

横浜国立大学大学院
工学府

藤井 景子
(Keiko Fujii)

2015 年 12月

目次

1 章 序論	1
1.1 液体キセノンシンチレータ	1
1.1.1 一般的なシンチレータの性質	1
1.1.2 液体キセノンシンチレータの諸特性	1
1.1.3 発光メカニズム	4
1.1.4 発光スペクトル	6
1.2 液体キセノン検出器を用いた実験	14
1.3 本研究の目的と意義	18
2 章 液体キセノンのレイリー散乱長	20
2.1 液体希ガスの散乱長	21
2.2 液体キセノンのレイリー散乱長と発光波長の関係	21
2.3 液体キセノンの散乱長の過去の報告	24
3 章 液体キセノンの発光スペクトルの測定実験	25
3.1 微弱なシンチレーション光の測定法	25
3.2 キセノン系	26
3.2.1 ガス系と冷却系	27
3.2.2 光学系	28
3.3 データ収集回路系	34
3.4 測定	35
4 章 解析	38
4.1 スケーラーのデータの解析	38
4.2 QADC のデータの解析	40

4.2.1	QADC のゲート信号の発生率と電荷スペクトル.....	40
4.2.2	QADC の利得の測定.....	41
4.2.3	1 光電子レベルの決定と信号選択のしきい値.....	42
4.3	スケーラーと QADC で取得した光量補正前のスペクトルの比較.....	48
4.4	瀬谷波岡型分光器 VM-502 の特性.....	50
4.5	波長の誤差の評価.....	52
4.5.1	低圧水銀灯の輝線スペクトルの測定.....	52
4.5.2	低圧水銀灯のレイ・トレース像を用いたピークのシフトのシミュレーション.....	53
4.5.3	分光器の波長の誤差の算出.....	58
4.6	光量の補正.....	59
4.7	波長補正後のスペクトル.....	61
4.8	FWHM の補正.....	62
5 章	結果及び考察.....	65
5.1	発光スペクトルの中心波長及び FWHM.....	65
5.2	レイリー散乱長.....	66
5.3	XMASS 実験への寄与.....	75
6 章	結論.....	79

参考文献

1 章 序論

1.1 液体キセノンシンチレータ

1.1.1 一般的なシンチレータの性質

放射線が物質に入射して相互作用すると、放射線のエネルギーが物質に吸収され、物質の原子や分子は電離もしくは励起される。電離や励起をされた原子や分子は、様々な過程を経て脱励起し基底状態に戻る際に、付与されたエネルギーを光として放出する場合がある。この現象をシンチレーションと呼び、放出される光をシンチレーション光、シンチレーション光を放出する物質をシンチレータと呼ぶ。シンチレータは、光を利用する放射線検出器の媒質として広く用いられている。

シンチレータには、以下に挙げるような性質を持つ物質が使われる。

- ・ シンチレーション効率が高く、付与エネルギーと発光量との間に線形性がある
- ・ 発光の立ち上がり時間と減衰時間が短い
- ・ シンチレータ自身がシンチレーション光を吸収しない

シンチレータとして最も広く使われてきたのは、ヨウ化ナトリウムなどの無機の結晶や、有機物質の結晶や液体、プラスチックなどである。一般に、無機の結晶は、発光量や付与エネルギーに対する応答の直線性の点で優れているが、発光の減衰時間は比較的長い。また、有機物質は、減衰時間は短いが発光量が少ない傾向がある。無機の結晶は構成する原子の原子番号が大きく密度も高いことから主に γ 線検出用に、有機物質は β 線や中性子測定用に用いられることが多い。

1.1.2 液体キセノンシンチレータの諸特性

キセノンは希ガス元素の1種で、1気圧の常温では無色無臭の気体である。大気中には体積比で 8.7×10^{-8} 存在し、液体空気の分留で得られる希ガス混合物をさらに分留して、低温で活性炭に吸着させ分離して得られる。天然のキセノンには9種の同位体があり、それぞれの天然存在比を表1.1に示す。放射性同位体としては、2重 β 崩壊を起こす ^{136}Xe (半減期 2.38×10^{21} 年[1]) と ^{124}Xe (半減期 $> 1.6 \times 10^{14}$ 年[2]) が存在するが、それぞれ寿命が非常に長く崩壊率は極めて小さい。放射性同位体を含む物質中での単位時間あたりの崩壊数は、放射性同位体の量に比例し半減期の逆数に比例するため、キセノンは超低放射能の元素である。

キセノンは1気圧では常温で気体であるが、低温もしくは高圧下では液化する。キセノンの沸点は1気圧において165.1Kで、融点の161.4Kまでの温度範囲で液相であり、放射性のラドンを除けば希ガスの中で最も高温で液化する。キセノンの物理的特性を表1.2に、キセノンの相図を図1.1に示す。

キセノンを放射線検出器の主要素とした場合、キセノンが本質的に超低放射能の元素であることと、蒸留や化学反応性の差異を利用した様々な純化手法が存在することから、超低バックグラウンドの放射線検出器の製作が可能である。特に、キセノンは原子番号が54と大きく、液化した場合は1気圧で密度が2.98 g/cm³と大きいことから、 γ 線に対する阻止能が高いという特長がある。図1.2に、 γ 線のキセノン中での減衰係数を示す。

表 1.1 キセノンの同位体の天然存在比 [3].

同位体	¹²⁴ Xe	¹²⁶ Xe	¹²⁸ Xe	¹²⁹ Xe	¹³⁰ Xe	¹³¹ Xe	¹³² Xe	¹³⁴ Xe	¹³⁶ Xe
存在比 (%)	0.096	0.090	1.92	26.44	4.08	21.18	26.89	10.44	8.87

表 1.2 キセノンの物理的特性.

特性	値	条件	文献
原子番号	54		
質量数	131.29		[4]
沸点	165.1 K	1 atm	[4]
融点	161.4 K	1 atm	[4]
液体の密度	2.98 g/cm ³	161.35 K	[3]

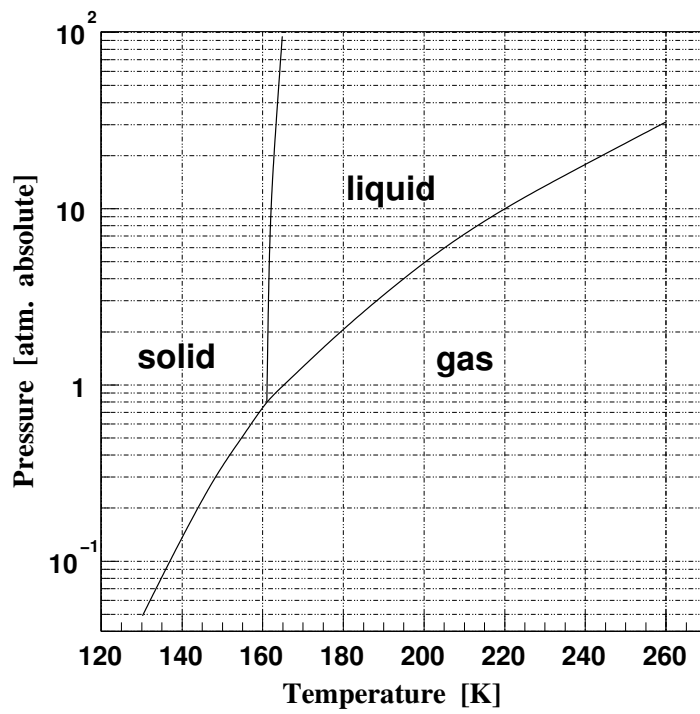


図 1.1 キセノンの相図 [5].

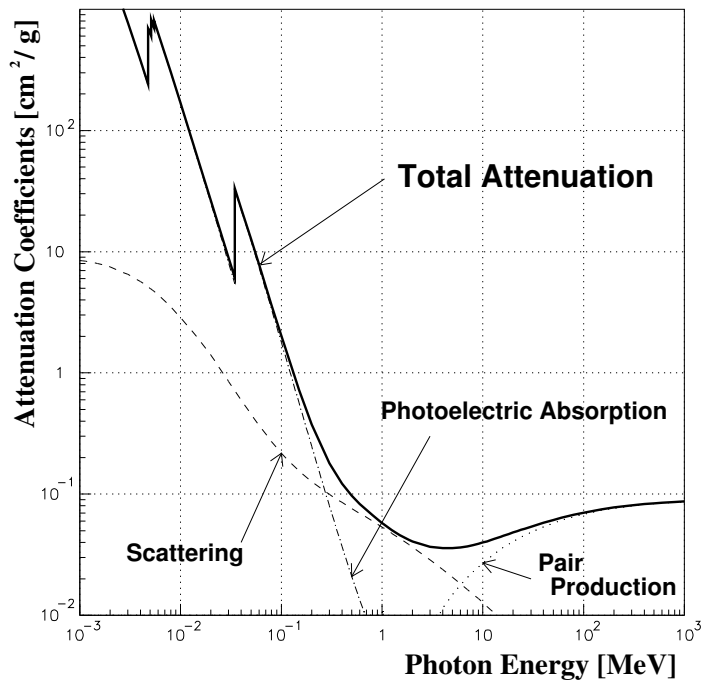


図 1.2 キセノン中での γ 線の減衰係数 [6].

さらに、液体キセノンは流体であるため自由な形状で大型の検出器を作ることができ、かつ、気体と比べて同じ物質質量でも寸法を小さくすることが可能である。

以下の表 1.3 に、シンチレーションに関する液体キセノンの特性を示す。

表 1.3 シンチレーションに関する液体キセノンの特性.

特性	値	条件	文献
屈折率	1.62	178 nm	[7]
発光波長 (中心値)	174 ^{a)} , 178 ^{b)} nm		a:[8, 9], b:[10]
レイリー散乱長 (実験値)	29 ^{c)} , 36.4 ^{d)} , 40 ^{e)} , 50 ^{f)} cm		c:[11], d:[12], e:[13], f:[14]
放射長	27.7 mm	液相	[15]
吸収長	≥ 100 cm		[16]
減衰時間 (再結合)	45 ns	電子, γ 線	[17]
減衰時間 (一重項)	4.2 ns	α 粒子	[17]
減衰時間 (三重項)	22 ns	α 粒子	[17]
発光量	46,000 光子/MeV		[18]

表 1.3 に示すように、シンチレーション光の発光波長やレイリー散乱長の報告値にはばらつきが見られるが、発光量については、大発光量で知られるヨウ化ナトリウム並みに大きい。減衰時間は、遅い三重項起源でも 22 ns [17]と応答が速い。また、希ガスシンチレータは一般に、次節に述べる機構によって放出する光子のエネルギーが希ガス原子の第一励起エネルギーよりも小さいため、シンチレータ自身がシンチレーション光子を吸収する自己吸収がない。

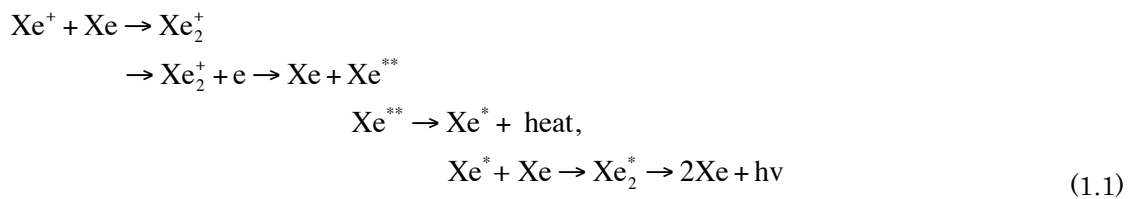
以上の様々な利点から、液体キセノンは優れたシンチレータとして、宇宙素粒子実験の検出器に用いられている。

1.1.3 発光メカニズム

液体希ガスのシンチレーションの過程を図 1.3 に示す[19]。放射線によりエネルギーが付与された希ガスには、イオンから始まる遅い発光と励起原子から始まる速い発光の2つの発光過程があると考えられている。液体キセノンでも両方の過程があると考えられているが、最終的な発光は同じ二量体のエキシマ Xe_2^* から基底状態への遷移によるもので、真空紫外 (VUV) 領域の波長を持つ光子を放出する。

放射線によりエネルギーを付与され電子・イオン対を生じた液体キセノンの、イオンから始まる発光過程は、具体的に次の通りであると考えられている。イオンは分子イオン Xe_2^+ を形成する。電子の一部は Xe_2^+ のクーロン引力から離脱するが、熱運動化した電子と分子イオンが再結合し、高い励起状態である Xe^{**} を介してエキシマ Xe_2^* を生成して発光する。

イオンから始まる発光



これに対し、放射線により励起原子が生成された場合は、直接にエキシマ Xe_2^* が生成されて発光する。

励起原子から始まる発光



なお、 Xe_2^* の脱励起にもさらに2つの時間成分があり、スピン一重項 $^1\Sigma_u^+$ からと考えられている速い成分とスピン三重項 $^3\Sigma_u^+$ からと考えられている遅い成分とがある。

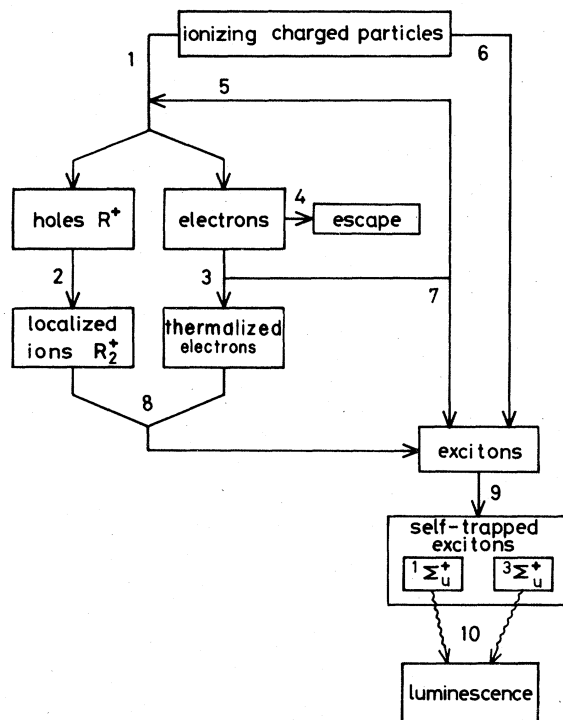


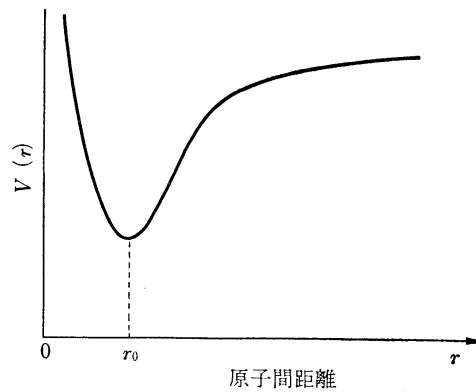
図 1.3 液体希ガス（アルゴン，クリプトン，キセノン）のシンチレーション過程。
 1. 電子-イオン対の生成. 2. 分子イオン (R_2^+)の形成. 3. 電子の熱化. 4. R_2^+ イオンのクーロン引力からの電子の離脱. 5. 電子による電子-イオン対の生成. 6. 電離粒子による励起子の生成. 7. 二次電子による励起子の生成. 8. 熱電子と分子イオンの再結合による励起子の生成. 9. 励起子の自己束縛による励起分子の形成. 10. 励起分子の脱励起によるシンチレーション光子の放出 [19].

1.1.4 発光スペクトル

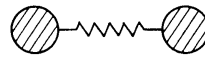
キセノンのシンチレーション光の波長スペクトルは，キセノン原子間のポテンシャルエネルギーに起因する。一般的な2原子分子のエネルギーポテンシャルを図1.4 [20]に示す。2原子分子では，2つの原子が最も安定な状態をとる原子間距離が存在し，分子のポテンシャルエネルギーを原子間距離 r の関数としてあらわすと図1.4(a)のようになる。このポテンシャル曲線は安定点付近では図1.4(b)のように近似的に，

$$V(r) \cong \frac{1}{2} K (r - r_0)^2 \tag{1.3}$$

と表すことができる。ここで，比例定数 K はポテンシャル曲線の曲率に対応する。



(a) ポテンシャル曲線



(b) モデル (バネ定数 K , 球の質量 $2M$)

図 1.4 2 原子分子のポテンシャルエネルギー曲線 [20].

(a) ポテンシャル曲線：ポテンシャルエネルギーの最小値をとる $r = r_0$ を境に， $r > r_0$ では原子間に引力が， $r < r_0$ では反発力がそれぞれ働く．(b) モデル：(a)の安定点付近における原子の相対運動は，ばねで結合された 2 つの球にモデル化できる．

一般的な結晶シンチレータの発光と消光は，von Hippel と Seitz によって提案された理論モデルにより議論できる。発光中心の電子の励起状態および基底状態におけるポテンシャルエネルギーは，図 1.5 のように，発光中心の配位座標 x に対して書くことができる [21]。図 1.5 の A の位置を r_1 とすると，発光中心の基底状態の電子は隣接する原子核から r_1 の位置を中心として運動する。励起状態と基底状態とは波動関数の形が異なるため，周囲の原子によるポテンシャルが異なる。

図 1.5 において，まず，光子の直接吸収や励起子の捕獲により，電子は励起状態に遷移する。このとき，フランク・コンドンの原理により基底状態から垂線 AC に沿って励起状態への遷移が起こる。励起状態へ移った直後はポテンシャルエネルギーが最小ではないため，C から B へ移動する。B に留まる時間は B から D への光学的な遷移確率に依存する。B のエネルギー状態に存在する平均時間を τ とすると，そのエネルギー準位は，

$$\Delta E \approx h/\tau \tag{1.4}$$

程度の広がりが生じ、遷移に関する寿命が短いほど、放出される光のスペクトル幅は広くなる[22]。よって、観測される発光スペクトルの線幅は、上記で述べた寿命広がり（自然放出による広がりである自然幅を含む）によって生じ、気体の場合はドップラー幅も起因する。発光して D に移った後は、過剰な振動エネルギーの熱的な消散と共に D から A へ戻る。図 1.6 に、図 1.5 に対応した吸収と発光の遷移を示す。

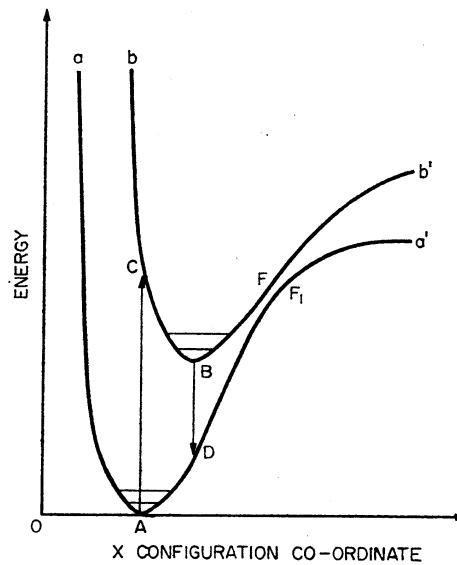


図 1.5 発光中心のポテンシャルエネルギーのダイアグラム.

aAa' は基底状態, bBb' は励起状態. A, B はそれぞれの状態における最安定な位置. AC は吸収の遷移で, BD は発光の遷移. FF₁ は内部消光の領域 [21].

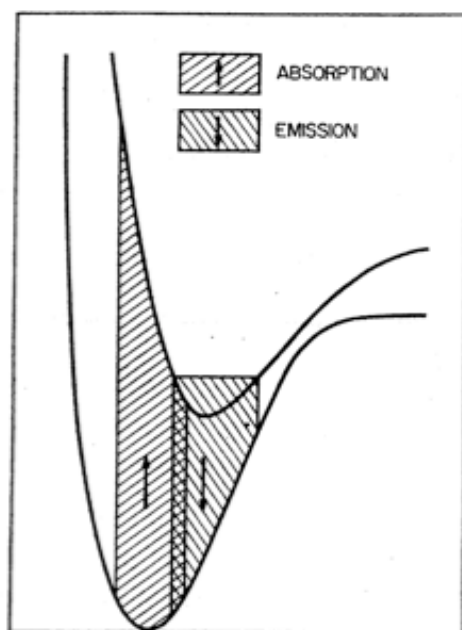


図 1.6 図 1.5 における AC と BD の遷移に対応する有限幅の吸収と発光.
 吸収スペクトルと発光スペクトルの重複を示す [21].

キセノンの発光については、Mulliken 等が気体キセノンのポテンシャルエネルギー曲線を示し、その発光がエキシマ Xe_2^* によるものであるとした上で、液体キセノンの発光も、同様に液体マトリクス中に埋め込まれた 2 原子分子 Xe_2^* からの発光として記述できると述べている[23]。以下の図 1.7 に、Mulliken 等が報告した気体キセノンのポテンシャル曲線を示す。

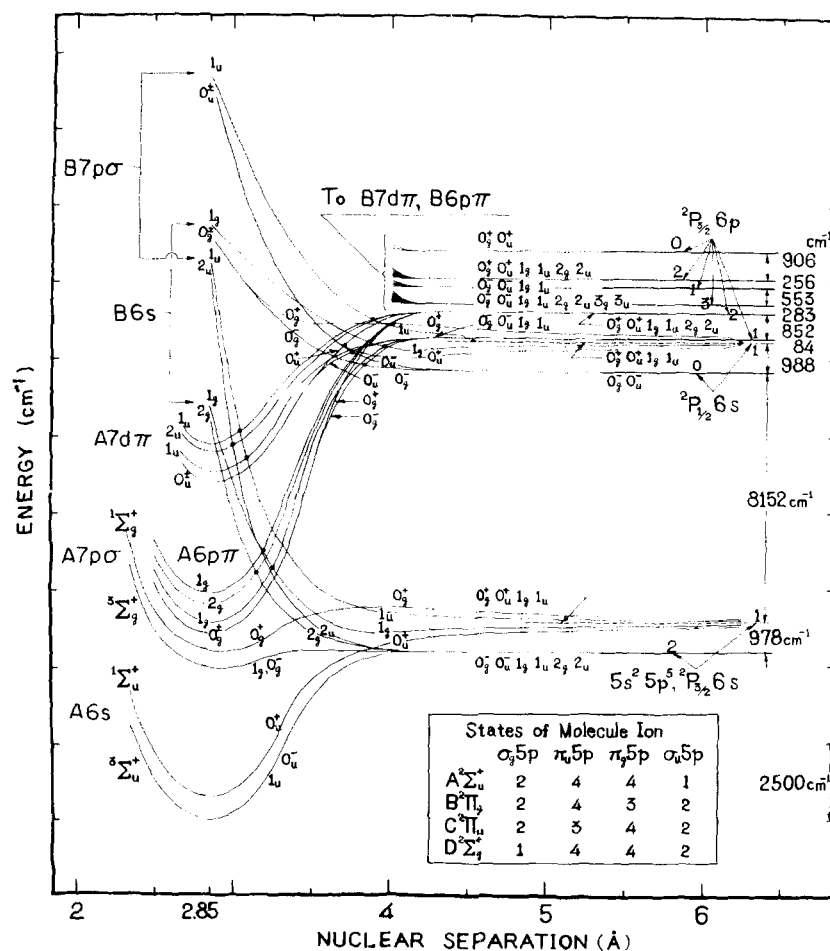


図 1.7 キセノンのポテンシャル曲線 [23].

図 1.7 において、横軸の原子核間距離 R が小さいところではキセノンは二量体であり、距離が大きいたるは、式(1.2)中の Xe^*+Xe で表した第一励起状態を表している。図中に A6s と書かれている曲線が、低い励起状態におけるスピン一重項状態 $^1\Sigma_u^+$ とスピン三重項状態 $^3\Sigma_u^+$ で、原子核間距離が 2.85 Å 辺りの極小部において、二量体が解離し基底状態へ遷移してシンチレーション光が放出される。このシンチレーション光のエネルギーは、基底状態と第一励起状態とのエネルギー差よりも小さいため、前述のようにキセノンは自身のシンチレーション光を吸収しない。

VUV領域で発光する液体キセノンのシンチレーション光の波長には、中心値として174 nmや178 nm等の値が使われてきた[24]。174 nmの根拠とされる報告は明確ではないが、178 nmを示したのは1965年のJortner等の実験の報告[10]で、これまで多く引用されてきた。

Jortner等は希ガス属のネオン，アルゴン，クリプトン，キセノンを，気相，液相，固相のそれぞれにおいて，強度が約5 mCiの ^{210}Po - α 線源を用いて局所的に励起し発光のピーク波長を報告した。Jortner等が測定したキセノンの発光スペクトルを，比較のためにアルゴンの発光スペクトルとともに図1.8に示す。

一方，近年になって齋藤等が気相の希ガスのシンチレーションのスペクトルを測定し，そのピーク波長を報告した[25]。齋藤等は励起源としてX線発生装置を用い，シンチレーション光を分光して，光電子増倍管（PMT）を電流モードで用いて測光した。齋藤等が報告した気体キセノンの発光スペクトルを図1.9に示す。また，Jortner等と齋藤等によって得られた希ガスの発光のピーク波長と半値全幅（FWHM）を表1.4に示す。なお，ここにおいてJortner等の得た各波長値は，文献中の各波数値から換算した。

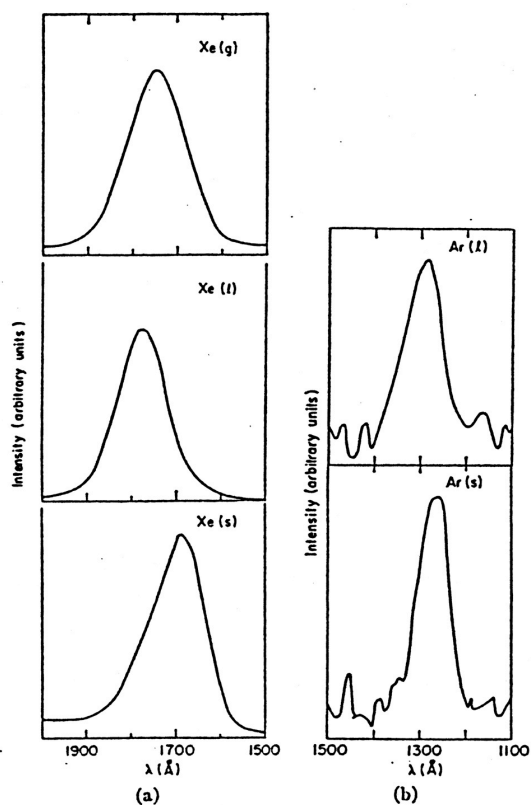


FIG. 2. Emission spectra of α -particle excited (a) Ar and (b) Xe in several states of aggregation.

図1.8 Jortner等が報告したキセノンとアルゴンの発光スペクトル[10].

左は上からXeの気体，液体，固体，右は上からArの液体，固体。

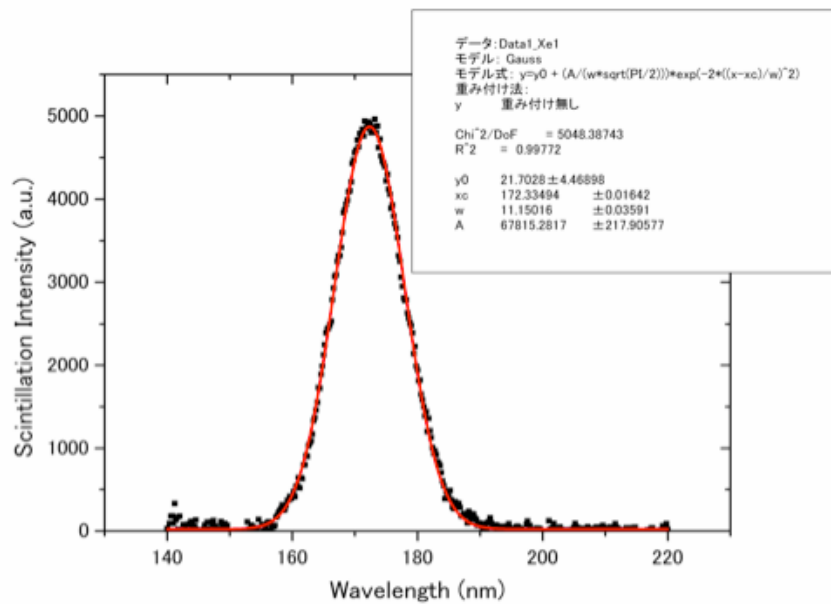


図 1.9 齋藤等が測定した気体キセノンの発光スペクトル[25].

表 1.4 Jortner 等と齋藤等が測定した希ガスのピーク波長の比較.

	発光のピーク波長 [nm] (FWHM [nm])				
	Ar (気体)	Kr (気体)	Xe (気体)	Xe (液体)	誤差
J. Jortner et al. (1965)	130 (-)	148 (13.2)	174.5 (15.0)	178 (14.3)	± 0.64
K. Saito et al. (2007)	125.9 (9.2)	145.5 (10.7)	172.4 (13.3)	-	± 0.3
発光波長の中心値の波長差	4.1	2.5	2.1	-	

表 1.4 が示すように、齋藤等が報告した気体のアルゴン、クリプトン、キセノンのピーク波長は、いずれの値も Jortner 等が報告した結果よりも 2 nm から 4 nm 程度短い。双方の実験では励起に用いた放射線種が異なるものの、従来の理論によれば、希ガスは入射した放射線種によらずに共通のエキシマの脱励起により発光スペクトルが決まると考えられており、励起線源の違いで説明することは難しい。そこで、測定系もしくはその校正に何らかの原因があった可能性がある。双方の実験系を図 1.10 及び図 1.11 に示す。

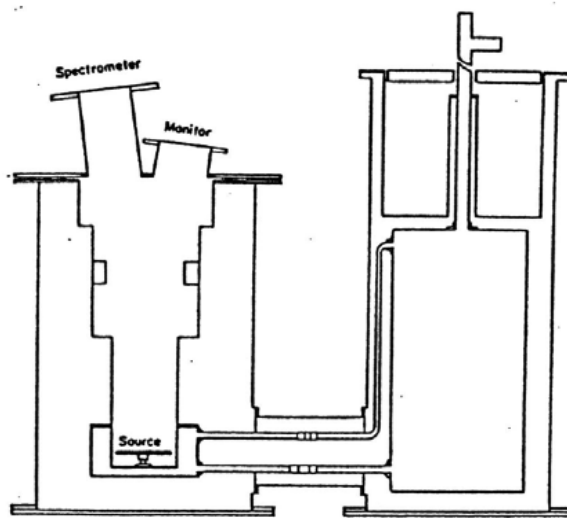


図 1.10 Jortner 等の実験系 [10].

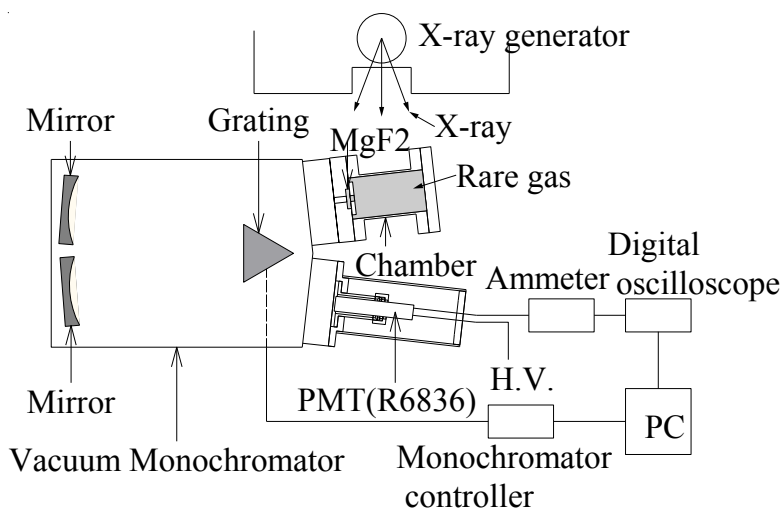


図 1.11 齋藤等の実験系 [25].

Jortner 等の実験系では、1.10 図内の右側が冷却槽、左側が気体を入れる 1/2 リットルのステンレス容器で、ステンレス容器には圧縮気体が満たされており、温度を調整することにより相を変化させていた。励起源には α 線源を用いていたことから、液相では特に α 線の飛程が短く線源に近い位置で発光したと考えられる。一方、齋藤氏等の測定では X 線で気体を励起しており、容器内の広い部分が光ったと考えられる。そこで、Jortner 等の実験系では、半分近い光が線源自身に反射し、短波長側が強めに吸収されて歪んだスペクトルとなれば、齋藤等の結果と比べて発光波長が 2 nm から 4 nm 長めに測定されたことも考えられる。

その他、液体キセノンシンチレータの実験では現在は必須の技術である、キセノンの高純度化、精密な温度制御、分光器を通った微弱な分光光の測定技術が、それぞれ Jortner 等が実験を行なった 1965 年当時は未熟であった可能性も考えられる。

以上のことから、上記の様々な現代の技術を駆使して、実験精度を上げて発光スペクトルを測定する必要がある。

1.2 液体キセノン検出器を用いた実験

液体キセノンは、前節で述べたように、発光量が多い、密度が高いので検出器をコンパクトにできる、 γ 線に対する阻止能が高い、などの様々な利点を持つ優れたシンチレータであることから、様々な宇宙素粒子実験に用いられている。また、近年は医療機器としても応用されつつある。ここでは、液体キセノンをシンチレータとして用いている代表的な実験例について述べる。

XMASS 実験

本実験は、岐阜県飛騨市神岡町の神岡鉱山内の、東京大学宇宙線研究所神岡宇宙素粒子研究施設の地下実験施設において進められている多目的の実験で、現在、832 kg の超高純度の液体キセノンを用いた実験装置が運転されている。宇宙は全エネルギーの 2 割強を未知の暗黒物質が占めていることが分かってきたが、その最有力候補である未発見の中性の素粒子、WIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) の探索が現在の主目的である[26]。その他、ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊の探索や、太陽ニュートリノの検出も目的としており、将来的には検出器をより大規模に拡大する予定である。

XMASS 検出器による WIMPs 探索では、WIMPs がキセノンの原子核と引き起こす弾性散乱などの相互作用で生ずるシンチレーション光を検出する。WIMPs の信号は、観測されたとしても発生頻度が非常に小さいと考えられているため、障害となるバックグラウンドを減ら

すために、宇宙線の μ 粒子の流束が地表の 10^{-5} に減少する地下1,000 mの環境で観測が行なわれている。

液体キセノンを用いた検出器（図1.12）は、正12面体の5角形の各面をそれぞれさらに5つの2等辺三角形に置き換えて球状に近づけた60面体で、直径が約80cmである[27]。液体キセノンを取り囲むように2インチ径の超低バックグラウンドのPMTが642本配置され、シンチレーション光を測光する。検出器は低温に保持するために真空断熱され、直径10 m、高さ10.5 mの超純水の水槽内のほぼ中央に設置されている。バックグラウンドとなる μ 粒子は水槽内に70本設置された20インチ径のPMTでチェレンコフ光を観測することで捉え、液体キセノン内部で発生した事象と区別している。

XMASS 実験で用いている 832 kg という液体キセノンの量は、他の暗黒物質探索実験のターゲットの量、例えば DAMA/LIBRA 実験や LUX 実験の 250 kg, XENON100 の 62 kg 等と比べて最も大きい。また、最近の液体キセノンを使った暗黒物質探索実験の中では、表 1.5 に示すように、電子反跳におけるエネルギーのしきい値が $1.1^{+0.4}_{-0.2}$ keV と最も低い[28]ことが、低エネルギーの γ 線を用いた校正で確かめられている。現在、NaI(Tl)シンチレータをターゲットに用いて暗黒物質探索を行い有意な季節変動の信号が観測されたと主張している DAMA/LIBRA 実験[29]を上回る低しきい値を実現しているのは XMASS 実験のみである。なお、XMASS 実験のキセノンは液相のみで用いられていて、気相も用いる二相型の XENON100 などの検出器と異なり消光を引き起こす電場も用いておらず構造がシンプルであることも特徴の一つである[28]。

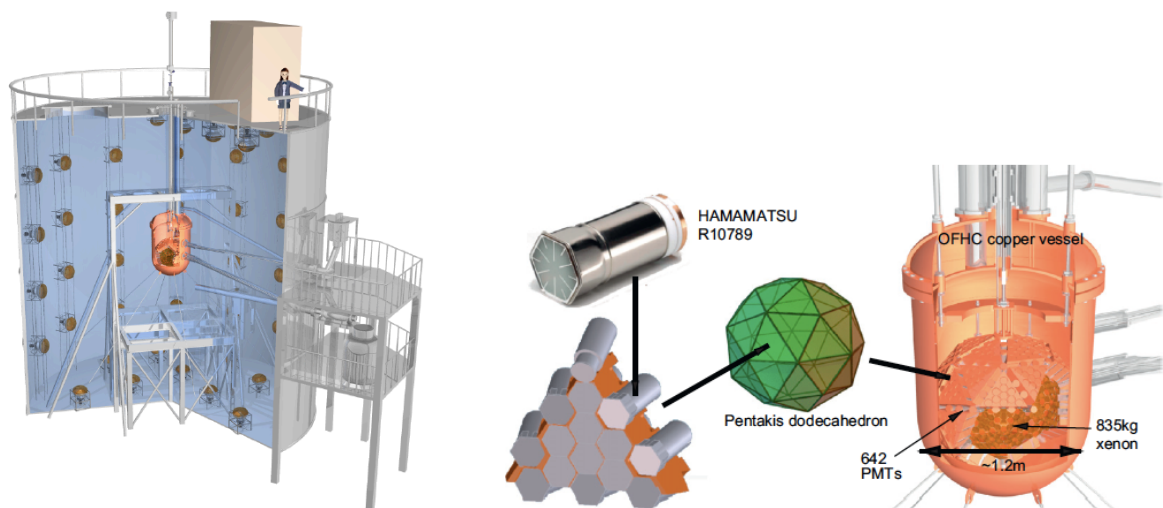


図 1.12 XMASS 実験の検出器（左：検出器と水タンク，右：検出器の構成[27]）。

表 1.5 液体キセノンを使った最近の4つの暗黒物質探索の比較 [28].

($|\vec{E}|$:印加している電場, $S1_{thr}$:シンチレーション光検出のしきい値, LY_{Co} : ^{57}Co によるシンチレーション光の収率, E_{thr} :電子反跳のエネルギーのしきい値)

暗黒物質探索	$ \vec{E} $ (V/cm)	$S1_{thr}(PE)$	$LY_{Co}\left(\frac{PE}{keV}\right)$	E_{thr} (keV)
ZEPLIN-III	3400	2.6	1.3	$2.8^{+0.5}_{-0.5}$
XENON10	730	4.4	3.0	$2.5^{+0.4}_{-0.3}$
XENON100	530	3.0	2.3	$2.3^{+0.4}_{-0.3}$
XMASS	0	4.0	14.7	$1.1^{+0.4}_{-0.2}$

XMASS 実験において WIMPs の信号を効率良く捉えるには、液体キセノン内で発生した事象のうちで外部放射線が最も侵入しにくい液体キセノン検出器の中央部で発生した信号を選ぶ必要があり、そのためには光の発生点の位置の決定精度が重要となる。光の発生点を決めるには PMT が捉えた光量分布から推定するが、この際、光が液体キセノン中を通る際に起きる散乱も考慮する必要がある。この散乱は主にレイリー散乱によると考えられており[9]、レイリー散乱の断面積を精度良く見積もることが重要となるが、この断面積は発光波長に強く依存するため、結局、発光波長の精度が暗黒物質の検出効率に影響することになる。

MEG 実験

本実験は、スイスのポールシェラー研究所で行なわれている μ 粒子の希崩壊を探索し、素粒子の標準モデルを超える新しい物理の兆候を捉えることを目指す加速器実験[30]で、その γ 線検出器に約 2.4 ton の液体キセノンを用いている。加速器で大量に発生させた正電荷の μ 粒子はポリエチレン・ポリエステル製のターゲットで停止させ、 μ 粒子が希に陽電子 e^+ と光子への 2 体崩壊を起こして共に約 52.8MeV のエネルギーで互いに反対方向に放出される現象を探索する。発生する陽電子は超伝導電磁石を用いたスペクトロメータで検出し、光子は液体キセノン検出器により検出する。液体キセノン検出器には約 900 L の容量の液体キセノンを用いている (図 1.13)。 μ 粒子の基本的な崩壊モードは $\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$ で、その大量の崩壊の中から希な $\mu^+ \rightarrow e^+ + \gamma$ 崩壊事象を高い SN 比で区別するためには、光子の到来時間、エネルギー、位置に関していづれも高精度に測定する必要がある。そして、シミュレ

ーションを用いて検出器の応答を理解する上で、液体キセノンの発光波長の精度の良い値が必要となる。

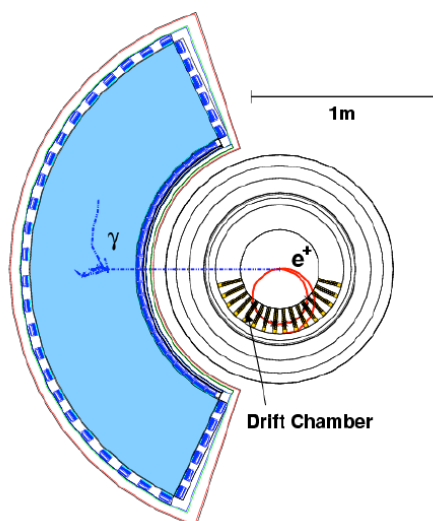


図 1.13 MEG 実験の検出器.

PET (Positron emission tomography)への応用

現在はまだ開発段階であるが、液体キセノンをPET装置に応用する試みも行なわれている。例えば、カナダのグループが提案するPET[31]では、液体キセノンの中に12個の台形のセクターが配置された構造が考えられている(図1.14)。各々のセクターではアバランシェ・フォトダイオード(APD)の2つのアレイによりシンチレーション光を検出し、その検出時間を基準にして、TPC(Time projection chamber)検出器として動作させる。陽電子と電子が対消滅した結果の511 keVの γ 線は、図1.14の右図でカソード側から検出器に入射し、液体キセノンと相互作用して吸収されると、その結果、電荷とシンチレーション光の両信号が生成される。電荷は電場によりドリフトさせてワイヤーに誘起される電荷からy座標の情報を取得し、アノードストリップで検出する電荷からx座標を取得する。さらに、シンチレーション光の信号を基準にしてドリフト時間とドリフト速度からz座標を取得して、最終的に γ 線の三次元の検出位置情報が求められる。

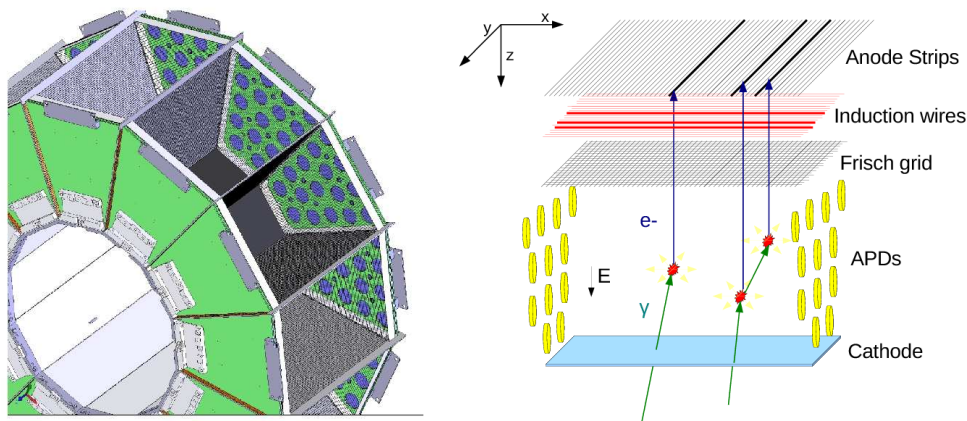


図 1.14 液体キセノンを用いた PET 検出器の構想の例 [31].

1.3 本研究の目的と意義

これまで述べたように、液体キセノンは優れたシンチレータとして様々な実験に用いられているが、検出器応答を理解するために必要な液体キセノンの光学的特性のうちのいくつかは未だ正確に定まっていない状況にある。発光波長はそのような光学特性のひとつで、高い精度の信頼される値が求められている。XMASS実験では、液体キセノン検出器で入射粒子が反応した発光点を求めるために散乱長の値が必須であり、その値を求める理論計算では発光波長の正確な情報が必要である。

1.1.4節で述べたように、発光波長は現在まで引用される値が定まっておらず、174 nm[8]から178 nm[3]とバラつきがある。この4 nmの違いは、次章で述べるように、散乱長に大きな誤差を生じさせるため、高い精度で発光波長を求める必要がある。

液体キセノンのシンチレーション光の波長を測定するには、まず、キセノンを低温の液体状態で安定に保持する必要がある。そのためには、1気圧では161.4 Kから165.1 Kの約3 K以内の温度で安定させなければならない。また、シンチレーション光の波長がVUV領域にあり、酸素や水に強く吸収されることから、これらの不純物を充分に取り除いて実験を行なうことも重要である。以上のことから、冷却系や純化装置、微弱なシンチレーション光の測定手法として現在の最新の技術を用いて、高精度での液体キセノンの発光スペクトル測定を行なう必要がある。

本研究の目的は、最新の冷凍機に基づく冷却系や、メタルゲッターを用いた純化系、VUV光の光子計数を行なう測光系など、現在利用可能な最新の技術を組み合わせて用い、液体キセノンの発光スペクトルを精度良く求めることと、それにより散乱長を精度良く求めること

である。具体的な目標としては、散乱長の誤差が現在の様々な応用で許容される数 cm 程度に収まるように、波長の誤差は 1 nm 以下とした。これにより、液体キセノンの発光スペクトルが精密な形状と共に正確に求まれば、現在進行中の液体キセノンを用いている各実験で検出器応答の正確な理解が可能になり大いに貢献することができる。

2章 液体キセノンのレイリー散乱長

シンチレーション検出器の応答を理解するには、シンチレータ内の散乱長や吸収長、シンチレーション光を検出する光センサの量子効率など、様々な基礎的なパラメータを知ることが重要である。そして、それらのパラメータを設定したモンテカルロシミュレーションで、放射線源を用いた校正実験で得られる検出器の応答が無矛盾に説明されるかを調べることにより、応答の理解が正しいかを確認することが行われている。

しかし現実には、すべてのパラメータを個々に十分な精度で得ることが難しい場合も多く、そのような場合は反対に、校正実験の結果が良く説明されるようにモンテカルロシミュレーションで評価が難しいパラメータを調整して推定することも行われている。前章で述べたXMASS実験でも同様で、検出器に使用されている金属部材の反射率をはじめVUV領域における様々な光学特性の信頼のおけるデータが乏しいため、 ^{57}Co 線源からの122keVの γ 線などを用いた校正実験に基づいて複数のパラメータを推定している。その結果、最適とされるパラメータの値が求まっても、現在もまだ十分に理解出来たと言える状況ではなく、現在も研究が進められている。このような状況を打開するためには、結局、それぞれのパラメータを独立した手法によって精度良く決定することが必要である。

光の散乱は、光の元々の進行方向を変えることから、XMASS実験の検出器のように検出される光の強度分布から幾何学的な考察で発光点を推定する際に位置決定精度を低下させる要因となる物理過程である。散乱が起きるまでの平均距離は散乱長と呼ばれ、重要なパラメータとなる。しかし、散乱長は実測が難しく、前章でも示したように、現在まで実験で確定値が得られたと言える状況にない。一方、理論的な考察から、液体キセノンでのシンチレーション光の散乱は主にレイリー散乱によるものと見込まれているので、レイリー散乱長を高い精度で計算出来れば、実測よりも高い精度で評価することも可能である。具体的にこの計算を行なう上で必要となる物理量は複数あるが、レイリー散乱長は光の波長の4乗に比例する係数を含むことから、シンチレーション光の波長は最も重要な量である。

そこで、本研究では液体キセノンの発光波長を精度良く求めるだけでなく、さらに液体キセノンのレイリー散乱長について従来にない高い精度で計算する。レイリー散乱長の精度が高まれば、検出器の応答のシミュレーションにおいて重要なパラメータの1つである散乱長

が定まり、結果として他のパラメータも高精度で推定することが可能となって、検出器の応答をより正確に理解出来る。

2.1 液体希ガスの散乱長

光が媒質に入射すると、光の振動電場により媒質中の分子に振動する双極子が生じ、分子の回転や振動が起きる。その結果、媒質に不均一性が生まれて結果として光の散乱が起きる。この光の散乱は、主に2種類に分けられる。1つはラマン散乱と呼ばれる結合散乱で、分子の振動や回転または電子状態の変化により、入射光とは異なる振動数の散乱光を生じる。もう1つはレイリー散乱と呼ばれる振動数の変化しない弾性散乱で、散乱の際に媒質の分子の内部状態の変化はなく、媒質分子の向きのばらつきや密度ゆらぎにより生ずる[32]。

液体中では、分子間の相互作用が大きく離散的エネルギー準位を持つ自由回転が存在しないために、ラマン散乱は分子の振動状態もしくは電子状態の変化のみ関与するので、強度はレイリー散乱の 10^{-6} と非常に小さい。したがって、希ガスの液体中で光の散乱を考える時は、多くの場合、散乱はレイリー散乱だけによるものと考えて良い。

2.2 液体キセノンのレイリー散乱長と発光波長の関係

液体中のレイリー散乱長 L は、光の角振動数 ω 、真空中の光速 c 、ボルツマン定数 k_B 、絶対温度 T 、液体の密度 ρ 、液体の等温圧縮率 κ_T 、液体の単位体積当たりの熱容量 C_v 、液体の比誘電率 ε を用いて以下のように表される[32]。

$$\frac{1}{L} = \frac{\omega^4}{6\pi c^4} \left[k_B T \rho^2 \kappa_T \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T^2 + \frac{k_B T^2}{\rho C_v} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_\rho^2 \right] \quad (2.1)$$

ここで、 ω を光の波長 λ で置き換え、

$$\left(\frac{\omega}{c} \right)^4 = \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^4 = \frac{16\pi^4}{\lambda^4} \quad (2.2)$$

の関係を用いると、(2.1)式は以下のように表せる。

$$\frac{1}{L} = \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left[k_B T \rho^2 \kappa_T \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T^2 + \frac{k_B T^2}{\rho C_v} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_\rho^2 \right] \quad (2.3)$$

希ガスの場合、希ガスが単原子分子で無極性の分子であることから、比誘電率 ε の温度依存性は密度依存性よりも遥かに小さいと考えられるため、

$$\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T \gg \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial T}\right)_\rho \quad (2.4)$$

となる。このことは、同じ希ガスのヘリウムとアルゴンでも実証済みである[33]。そこで、(2.1)式は結局、その第二項を省略して下記の式で表される。

$$\frac{1}{L} = \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left[k_B T \rho^2 \kappa_T \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T^2 \right] \quad (2.5)$$

さらに、原子の分極率が密度には依らないとすれば、

$$\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho} = \frac{(\varepsilon-1)(\varepsilon+2)}{3\rho} \quad (2.6)$$

となる[9]ことから、(2.5)式は、以下のように書き換えることができる。

$$\begin{aligned} \frac{1}{L} &= \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left[k_B T \rho^2 \kappa_T \left\{ \frac{(\varepsilon_{(\lambda)}-1)(\varepsilon_{(\lambda)}+2)}{3\rho} \right\}^2 \right] \\ &= \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left[k_B T \kappa_T \frac{(n_{(\lambda)}^2-1)^2 (n_{(\lambda)}^2+2)^2}{9} \right] \end{aligned} \quad (2.7)$$

ここで、光の波長の関数となる屈折率を $n_{(\lambda)}$ とし、 $\varepsilon_{(\lambda)} = n_{(\lambda)}^2$ の関係を用いた。

(2.7)式に基づいて、液体キセノンのピーク波長の引用値の174 nmと178 nmのそれぞれについて、レイリー散乱長を以下に計算する。

光の波長に対する屈折率は、2006年に、165 Kで 0.101 MPaの液体キセノンについて、0.007の誤差で求められている[7]。そこで、この測定値に、以下のSellmeierの分散式の第2項まで

$$n^2 - 1 = \frac{A_1 \lambda^2}{\lambda^2 - B_1} + \frac{A_2 \lambda^2}{\lambda^2 - B_2} \quad (2.8)$$

を用いてあてはめを行なった。ここで、 A_1 、 A_2 、 B_1 、 B_2 は定数で、それらの最適値と共に、液体キセノンの屈折率と波長の関係を図2.1に示す。図が示す通り、(2.8)式はVUV領域から

可視光域まで広い波長範囲で実測値を良く再現する。これにより屈折率は、発光波長の引用値においては、174 nmで1.65, 178 nmで1.62となる。

波長の関数としての屈折率, 及び, 165 Kでの等温圧縮率を $1.68 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{N}$ [9]として算出したレイリー散乱長の計算値を表2.1に示す。同表から分かるように, 発光波長が174 nmと178 nmとわずかに違うだけでも, レイリー散乱長には20%以上の違いがあることから, 波長の精度良い値を得ることが重要であることを示している。

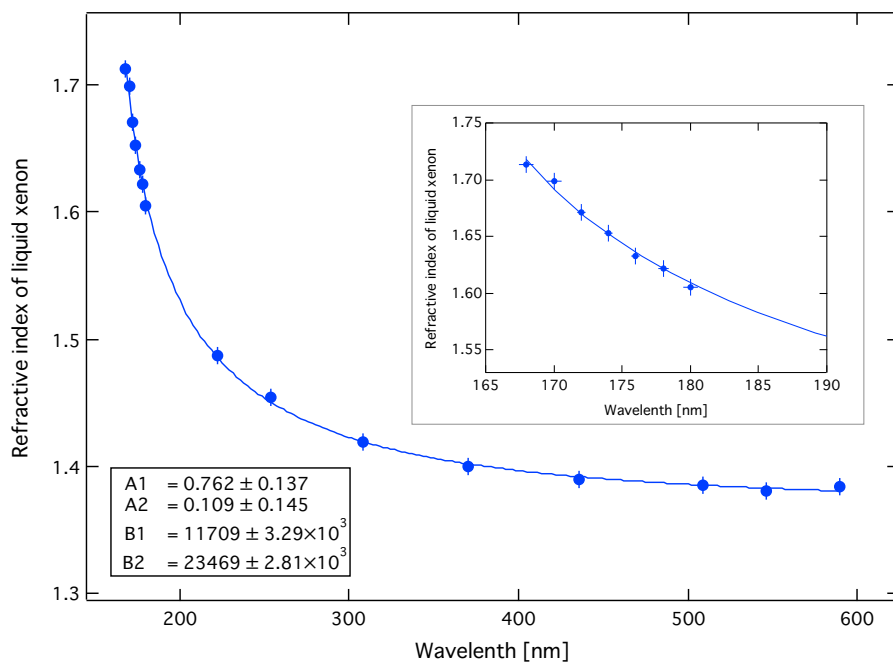


図 2.1 液体キセノンの屈折率の測定値[7]と Sellmeier の分散式.

表 2.1 液体キセノン中でのレイリー散乱長.

波長 (nm)	172	174	175	178	180
散乱長 (cm)	32	37	42	50	55

2.3 液体キセノンの散乱長の過去の報告

液体キセノンのシンチレーション光に対する散乱長の報告はこれまでに複数が存在する。

実測値は複数の報告が存在するが、各値には29 cmから50 cmまでばらつきがある(表2.2)。さらに、誤差が明記されている値で比較すると、それらの間には有意な差があるが、その原因については実験条件の詳細の注意深い検討が必要で、現状では、散乱長の信頼のおける値が確定しているとは言えない状況である。

一方、計算によって確からしい散乱長を求める試みは、Seidel 等によって行われた。彼等が計算して求めた30 cmというレイリー散乱長の値[9]は、2.2節で述べた液体キセノンの温度や等温圧縮率に基づいているが、シンチレーション光の波長には174 nmを用い、また屈折率には、当時に報告されていた2つの実測値、 $n=1.565\pm 0.01$ [34]と $n=1.72\pm 0.02$ [35]とが有意に一致しなかったため、比誘電率から $n=1.69$ という値を用いている。用いられたこの屈折率の値は、前節で述べた最新の値に比べ明らかに大きいことから、Seidel 等は、この点から、レイリー散乱長を実際より小さく見積もっていると思われる。

今後、散乱長を正確に実測するには、過去の報告を整理し、信頼のおける結果が得られるような進んだ実験系を構築した上での測定が望まれる。また、散乱長を計算で正確に求めるには、レイリー散乱長を正確に求めるべく、波長で大きく変化する屈折率を含め散乱長の強い波長依存性を正確に反映させるために、まず発光波長を精度良く決定することが第一義的に必要な状況にある。

表 2.2 液体キセノンの散乱長の過去の報告.

計算値 [cm]	実測値 [cm]	測定条件	文献
30	—	—	[9]
—	29 ± 2	196 K, 4.1 atm	[11]
—	36.4 ± 1.8	170 K	[12]
—	40	約 163 K, 1 atm	[13]
—	50	199K, 4.5 atm	[14]

3章 液体キセノンの発光スペクトルの測定実験

3.1 微弱なシンチレーション光の測定法

本研究では、液体キセノンの発光スペクトルを求めるために、減衰時間の短い微弱なシンチレーション光の測定に適した光子同時計数法[36]を用いた(図3.1)。この方法は、シンチレーションが起きたタイミングに限定した同時計数により、シンチレーション光を分光器に通して光子計数を行なうもので、シンチレーションと相関の無いバックグラウンドの計数を抑制することが出来ることから、信号の光子計数のSN比を高くすることが出来る。本研究では分光した光の光子計数について、光センサの中では低ノイズかつ高ゲインで高速に応答するPMTを使用すると共に、シンチレーションが起きたタイミングも別のPMTで直接にシンチレーション光を捉えることで取得した。

本研究で構築した実験装置では、液体キセノンを真空槽内に取り付けた容器内に溜め、真空槽の外から校正用線源の γ 線を照射して液体キセノンを励起し、発生するシンチレーション光の分光から光検出までのすべてを真空環境下で行なった。このように真空槽を用いることで、効率の良い断熱を実現して液体キセノンを安定して溜めることができ、またVUV領域のシンチレーション光が酸素等に吸収されることも避けられる。

なお、発光スペクトルの測定を精密に行なうためには、分光器のスリットを狭めて分解能を高める必要があり、その結果として必然的に分光光の強度が非常に低下する。この点からも、光の強度を光子の数で測定する光子計数の技術を用いることは本研究に適している。

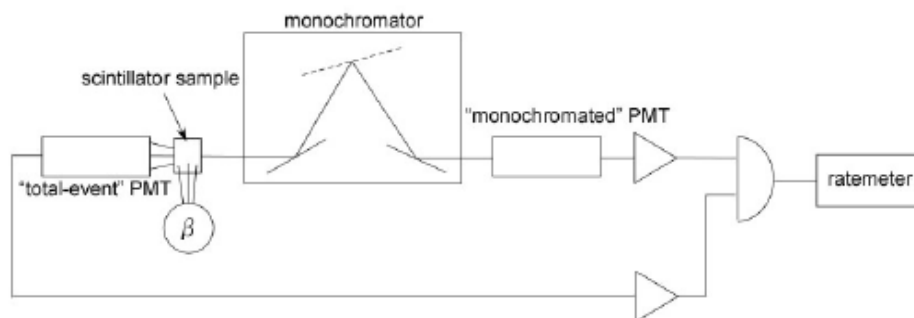


図 3.1 光子同時計数法による発光スペクトル測定の原理 [36].

3.2 キセノン系

本研究で用いるキセノンの系は、大きく分けて、キセノンが占める系と、それに付随している真空の系との2つの系に分けられる。このいずれの系も最初に、実験開始時にじゅうぶんに真空に引き、続いてキセノンを必要な箇所だけに導入出来るようになっている。

キセノン系全体の配管図を図 3.2 に示す。真空引きは三系統で独立に行なえるように組まれている。図に緑で示した箇所が液体キセノンを溜める容器を内に含む真空槽の系、青で示した箇所が VUV 用分光器に関する系、赤で示した箇所がキセノンを導入する系である。

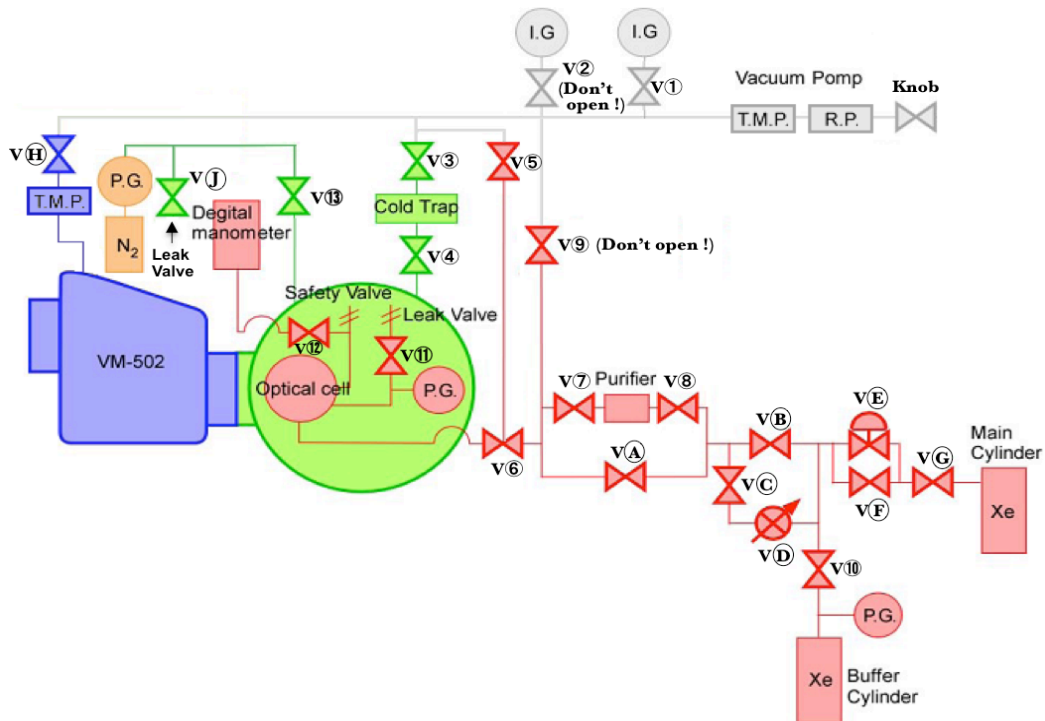


図 3.2 実験装置の系（青：分光器の系，緑：真空槽の系，赤：キセノンガス系）。

以降、キセノンガスの導入や回収に関わる部分をガス系、キセノンガスを導入した後に冷却する系を冷却系と呼ぶことにする。また、液体キセノンを溜めた容器や、容器から光を取り出す光学窓および同窓から放出されるシンチレーション光を測光する PMT や分光器を含む系全体を光学系と呼ぶことにする。以下、それぞれについて述べる。

3.2.1 ガス系と冷却系

図 3.3 に、ガス系と冷却系の構成を示す。この系により、実験開始時に気体キセノンを測光用容器へ導入し、続いて気体キセノンを冷却して液化して保持して、測定終了後には液体キセノンを気化して回収を行なった。

液体キセノンを後述する測光用容器に導入する具体的手順は以下の通りである。まず初めに、キセノンを導入する先の系全体を 10^{-5} Pa まで真空に引く。次に、バッファシリンダに入っているキセノンガスを、メタルゲッター (St707, SAES Getters) の純化装置に少しずつ通しながら測光用容器に導入する。メタルゲッターの仕様を表 3.1 に示す。

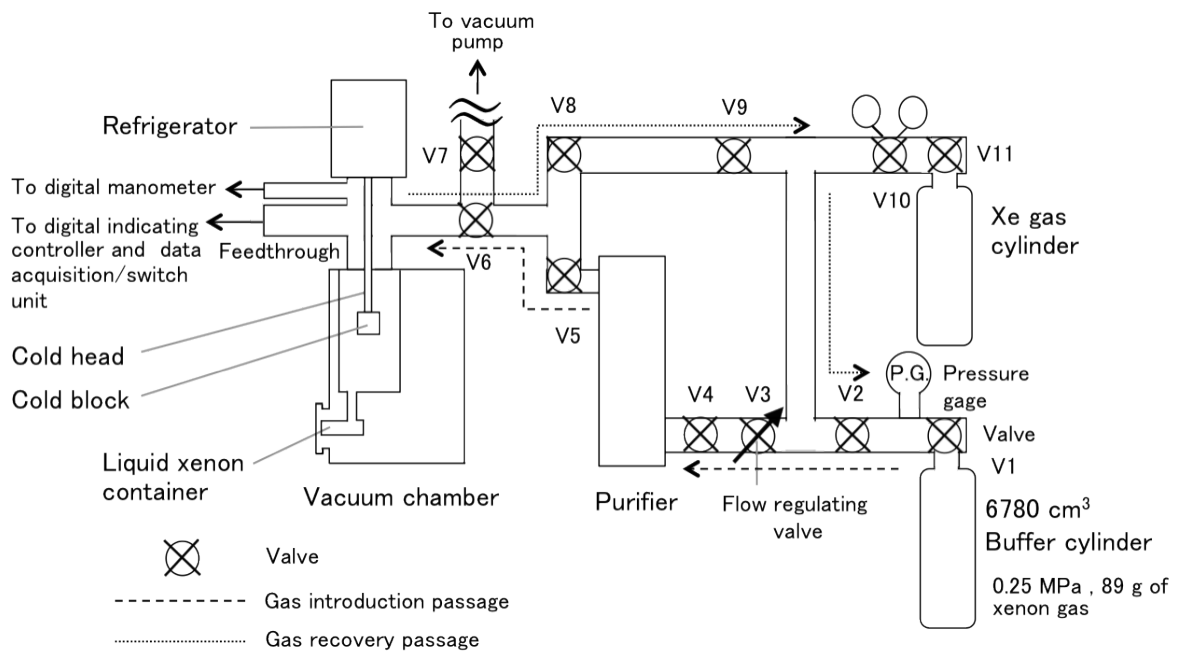


図 3.3 キセノンガス系と冷却系の構成.

表 3.1 メタルゲッターSt707 の仕様.

組成	Zr 70%, V 24.6%, Fe 5.4%
形状	ペレット (4 mm ϕ \times 2 mm)
活性化温度	400 °C
活性化時間	10 min ~ 3 hr
使用温度	250 °C
付着物質	CO, CO ₂ , H ₂ , N ₂ , O ₂ , H ₂ O

バッファシリンダに入っているキセノンガスは、過去の測定で繰り返し使用され、その度に純化と回収を繰り返した。キセノンガスの圧力はデジタル圧力計 (MT110, YOKOGAWA) によりモニターし、測光用容器の内圧が 110 kPa になるまで導入した。次に、容器内のガスを、容器の上部に取り付けられたパルス管冷凍機 (PDC08Y, IWATANI) で冷却した。温度の制御は温度コントローラを用いて、コールドブロックに設置した白金測温抵抗体から読み取った温度が予め設定した温度になるように、同じくコールドブロックに取り付けたヒーターによって調節した。これを用いることにより、精密な温度制御が必要となる本実験において、 ± 0.1 K での温度調整が可能である。

液体キセノンの量は、光学容器の底面から 8 mm 間隔で設置された 3 つの白金測温抵抗体 (PT-111, Lake Shore) で測定した。これらの 3 つの測温抵抗体の抵抗値は、DATA Acquisition/Switch Unit (34970A, HEWLET PACKARD) によって常時モニターし、温度を読み取った。

キセノンの回収時は純化装置を通さず、バッファシリンダの下部を液体窒素で冷却してキセノンガスをシリンダ内に固化させることにより、系内に生ずる圧力勾配を利用して回収した。

3.2.2 光学系

光学系の平面図を図 3.4 に、光学系の断面図を図 3.5 に示す。

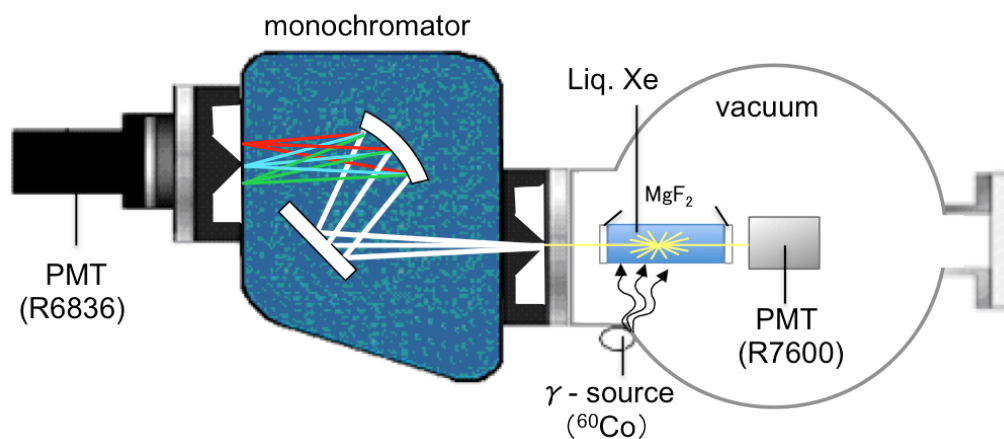


図 3.4 光子同時計数法による発光スペクトル測定の光学系。

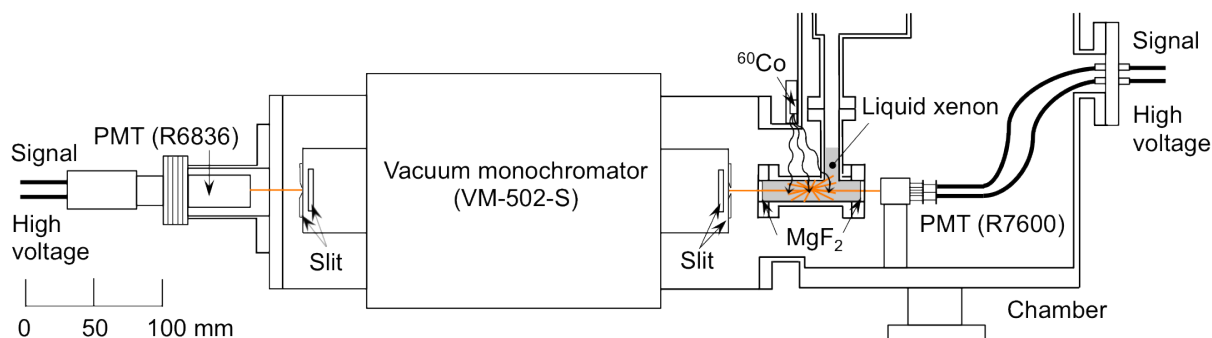


図 3.5 光学系の断面図.

液体キセノンは、両端に VUV 光の透過率が高い MgF_2 窓を取り付けた、ステンレス製の小さな円筒形の容器（直径 16mm，長さ 56.6mm）に溜めた。液体キセノン容器の一方の端から出たシンチレーション光は、クォーツ窓を持ち VUV 光に感度を持つ PMT（R7600，浜松ホトニクス，特注品）で検出した。液体キセノン容器のもう一方の端から出たシンチレーション光は、VUV 領域に対応した真空引きが出来る瀬谷波岡型の分光器（VM-502-S，Acton Research Corp.，波長精度：0.1 nm）によって分光後， MgF_2 窓を持つ光子計数用の PMT（R6836PX，浜松ホトニクス）で測光した。

液体キセノン容器は分光器のスリットになるべく近づけ，容器の内壁で生じ得るシンチレーションの反射光が分光器の開口比以内の垂直に近い角度で入ることを最小限に抑えた。

以下に，測定に用いた放射線源及び光学系を構成する装置や検出器の使用方法を述べる。

^{60}Co 線源（ γ 線源）

放射同位体の ^{60}Co は半減期が約 5.27 年で，その殆どが，最大エネルギーが 0.31 MeV の β 線を放出して ^{60}Ni の励起状態へ遷移する。この励起状態の寿命は 10^{-10} 秒以下で，直ちに 1.17 MeV の γ 線を放出し，下の励起状態に遷移する。この励起状態の寿命も 1.2×10^{-12} 秒と短く，1.33 MeV の γ 線を放出して， ^{60}Ni の安定な基底状態へと遷移する。

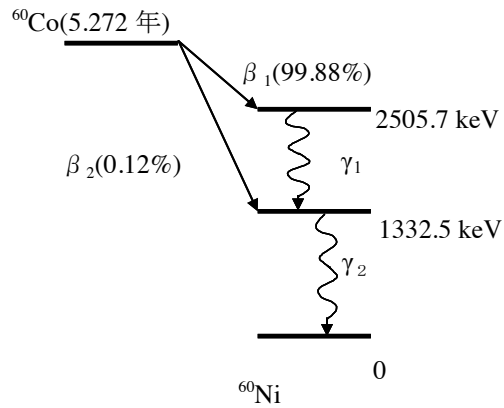


図 3.6 ^{60}Co の崩壊過程.

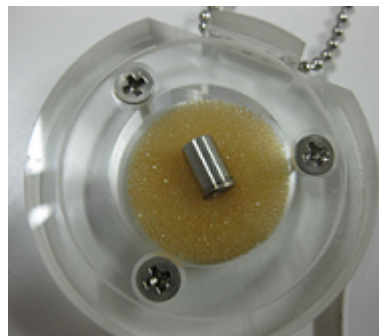


図 3.7 液体キセノンの励起に使用した ^{60}Co 線源.

実験で使用した ^{60}Co 線源の強度は、2007年2月時点で 3.7 MBqであったので、半減期を元に計算すると、測定時にはおよそ1.8 MBqであったと推定される。

分光器

用いたVM-502-Sは、VUV領域から可視光まで広く感度があり回折格子の効率の最適波長がVUV領域にあるものを選んだ。この分光器はコントローラを通じて、ソフトウェアによってPC端末から波長を指定する操作などを行った。分光器の仕様を表3.2に示す。

表 3.2 分光器 VM-502-S と用いた回折格子の仕様.

焦点距離	0.2 m
回折格子	1,200 G/mm (収差補正凹面型ホログラフィック)
回折格子エリアサイズ	40 mm × 45 mm (=1,800 mm ²)
開口比	f / 4.5
分解能	0.12 nm @121.6 nm
逆線分散	4.2 nm/mm @121.6 nm
スキャン波長領域	0 - 540 nm
回折格子コーティング	MgF ₂
波長精度	± 0.1 nm
波長再現精度	± 0.005 nm
スリット高さ	最大 20 mm

キセノン用セル

セルはステンレス製で、上部と下部の2つの部分からなる(図3.8)。両者の接続部とMgF₂窓は、ICF34規格のフランジとして接続される。セルの上部は、下側が下部と繋げるために細くなっており、下部の逆T字型のセルの内壁を伝わらせて液体キセノンを溜める。測定では、約11 mℓの液体キセノンをセルに溜めて行なった。このセルはサイズが小さいため、大型の液体キセノン検出器では大きく影響するキセノン中の散乱や吸収の影響を抑えられる。実際、セルのサイズは液体キセノンのレイリー散乱長に比べて十分に小さいことが結果として確認出来ているので、発光波長の測定には適当な寸法である。容器の形状と大きさは、分光器のF値を使って考慮した。

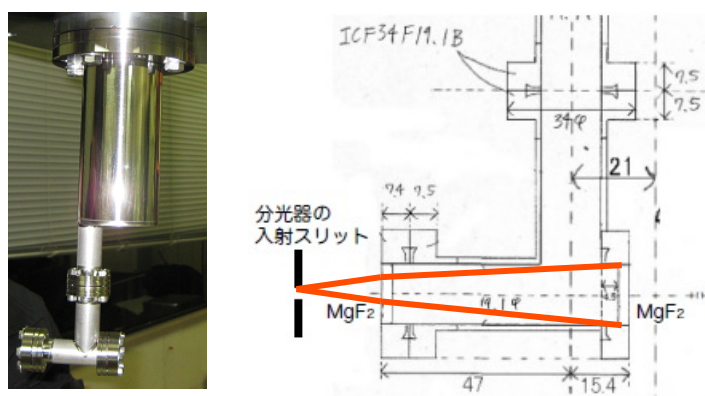


図 3.8 光学セル. 左が全体で、右が下部.

ビューポート

セルの両端には、コスモテック社製のICF34規格のフッ化マグネシウム (MgF_2) 窓のビューポートを取り付けた。ビューポートは、フランジと MgF_2 材が一体になっており、用いられている MgF_2 の厚みは1 mmである。 MgF_2 は、VUV光の透過率が高い材料として知られており、本研究で発光波長を測定した波長領域での透過率の波長依存性も十分に小さい。

PMT

先に述べたように、光子同時計数法で必要とされる直接光の検出用のPMTと、分光光の検出用のPMTの2本を用いた。実験に使用した2種類のPMT、R6836PXとR7600の仕様と量子効率を、表3.3及び図3.9、図3.10、表3.4に示す。R7600は特注品であり、仕様の詳細は不明である。R7600はマルチアノード型で光電面は4分割されているので、そのうちの1つの光電面のみを用い、その中心がキセノン用セルの中心軸を通るようにPMTを設置した。なお、双方のPMTは、取り付け方を考慮し暗電流やノイズの発生を抑えるため、光電面をグラウンドにし陽極に正の高電圧を印加するソケットアセンブリを取り付けて、パルスモードで使用した。

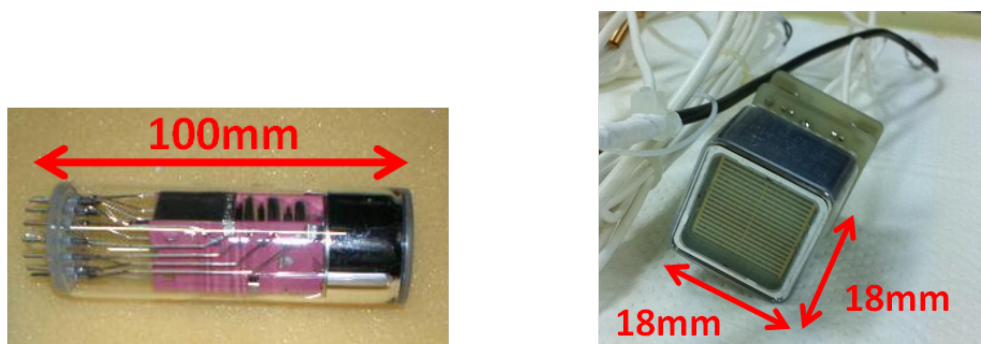


図 3.9 測定に用いた PMT. 左が R6836PX (浜松ホトニクス) , 右が R7600-06-M4 の特注品 (浜松ホトニクス) .

表 3.3 R6836PX の仕様.

適用波長領域	115~320 nm
最大感度波長	240 nm
光電面サイズ	φ23 mm
光電陰極物質	セシウム-テルル
窓材	フッ化マグネシウム
陽極構造	ボックスライン型
陽極段数	11
適用ソケット	E678-14C
最大許容電圧	1,500 V
ゲイン	5.0×10^5 @1,000 V
陽極暗電流 (暗所に30分放置後)	0.3 nA
パルス立ち上がり時間	4.0 ns

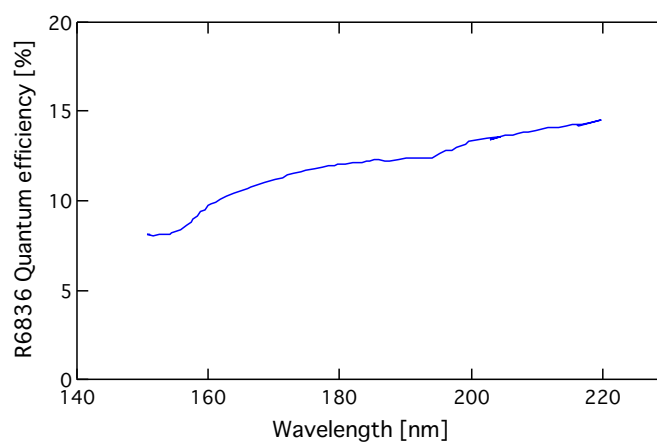


図 3.10 R6836PX の量子効率.

表 3.4 R7600-06-M4 (浜松ホトニクス) の仕様.

窓材	石英
量子効率	31% @ 175 nm
最大許容電圧	900 V

分光光を測る PMT は、測光のために固定するとともに分光器の真空を保つため、Oリングを用いた専用のアダプタを用い、光電面を真空に暴露したまま外部とは気密を保って分光器に取り付けた。

各 PMT の印加電圧は、直接光用に用いる R7600 は 800 V とし、分光光用に用いる R6836PX は高ゲインを得るために 1,450 V とした。

3.3 データ収集回路系

各 PMT からのパルス信号は、NIM 規格モジュールで構築された処理回路系で必要な信号処理を行なった後、CAMAC 規格モジュールで構築された系と Linux を搭載した PC を使ってデータを取り込んだ。この回路系の概要を図 3.11 に示す。

この回路系では、直接光を検出する PMT (以降, PMT 1) からのアナログ信号は 7.1 倍に増幅後、コンスタントフラクシオンディスクリミネータ (以降, CFD) に入力した。CFD からの NIM 信号は、電荷積分型 ADC (以降, QADC) のゲート信号と、同時計数のためのコインシデンスモジュール (以降, COIN) に入力した。一方、分光光を検出する PMT (PMT 2 とする) からのアナログ信号は、まずリニアファンイン・ファンアウトモジュール (以降, LFIO) で複製した後、その 1 つは CFD に入力し、NIM 出力を同時計数のための COIN に入力した。COIN では、PMT 1 からの NIM 信号から 240–300 ns (測定によって異なる) 以内で PMT 2 からの NIM 信号が入ったときに NIM 信号を出力する。COIN からの NIM 出力はスケーラーに入力し、同時計数された光子をカウントする。

LFIO からのもう 1 つの信号は、アナログ信号の電荷量を取得するために QADC に入力した。この QADC で取得したデータから、PMT 1 と PMT 2 で同時に検出されたイベントの分光光の光子数が分かり、発光スペクトルを求めることができる。

なお、QADC では AD 変換に 200 μ s 程度の時間を要することから、AD 変換中に次のゲート信号が入らないように、ゲート信号に 500 μ s の VETO を掛けている。

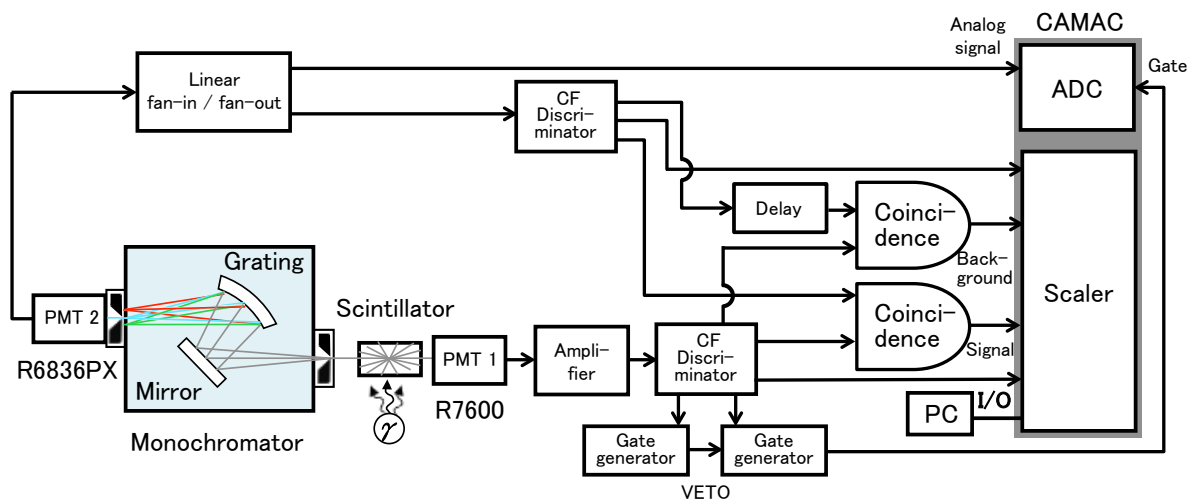


図 3.11 発光スペクトル測定に用いた回路系.

各 PMT の信号を計数するために CFD の NIM 出力を用いて、また、同時計数のバックグラウンドを計数するため、PMT 1 の信号を $1\mu\text{s}$ 送らせて相関を無くした PMT 2 との偶然同時計数も COIN の出力を用いてスケーラーで計数した。

これらの全てのデータ取得は Linux を搭載した PC で CAMAC 系を制御して行い、スケーラーと QADC の全データをイベント毎に取得した。なお、分光器の波長設定や変更も同一の PC で行なった。

3.4 測定

解析には、液体キセノンの圧力と温度が、 110 kPa と 168 K (実験 I) , および 117 kPa と 169 K (実験 II) の 2 種類の条件のデータを用いた。分光器のスリット条件は、入射側と出射側ともに、実験 I は高さが 16 mm で幅が 0.5 mm , 実験 II は高さが 4 mm で幅が 0.8 mm であった。実験 I のスリット条件は、波長分解能を上げるためにスリット幅を狭めた条件であり、実験 II は、光量を増やすためにスリット幅をやや広くしてスリット高を低く抑えた条件である。

液体キセノンは、チェンバー側面に取り付けた ^{60}Co 線源 (1.8 MBq) の 1.17 MeV と 1.33 MeV の γ 線で励起した。

分光光の強度は、分光器の上記のスリット条件では 1 光電子レベルとなった。2 つの測定において、PMT 2 で検出した分光光の信号の CFD のしきい値は -30 mV で、およそ 0.21 光

電子レベルであった。PMT 1 で検出した直接光の信号の増幅後の CFD のしきい値は、実験 I では -50mV 、実験 II では -29mV とした。

各測定でのデータ取得の波長と時間の条件は、実験 I では、波長範囲は $160\text{--}191.2\text{ nm}$ 、波長間隔は 0.8 nm 、測定時間は一波長当たり 1500 秒 （但し QADC の有感時間は 1280 秒 ）であった。実験 II では、波長範囲は $160\text{--}189.9\text{ nm}$ 、波長間隔は 1.0 nm 、測定時間は実験 I と同じであった。以上の測定条件をまとめたものを表 3.5 に、具体的な信号のタイミングチャートを図 3.12 に、また、測定時の直接光および分光光の信号波形を図 3.13 にそれぞれ示す。

表 3.5. 液体キセノンの発光スペクトルの測定条件.

	スリット幅 (mm) / 高さ (mm)	CFD しきい値 (mV)		波長範囲 (nm)	波長間隔 (nm)	ADC の Gate 幅 (ns)	一波長当たりの Live time (s)	
		PMT1	PMT2				ADC	Scaler
実験 I	0.5 / 16	-50	-30	160.0 – 191.2	0.8	300	1280	1500
実験 II	0.8 / 4	-29	-30	160.0 – 189.9	1.3	250	740	1200

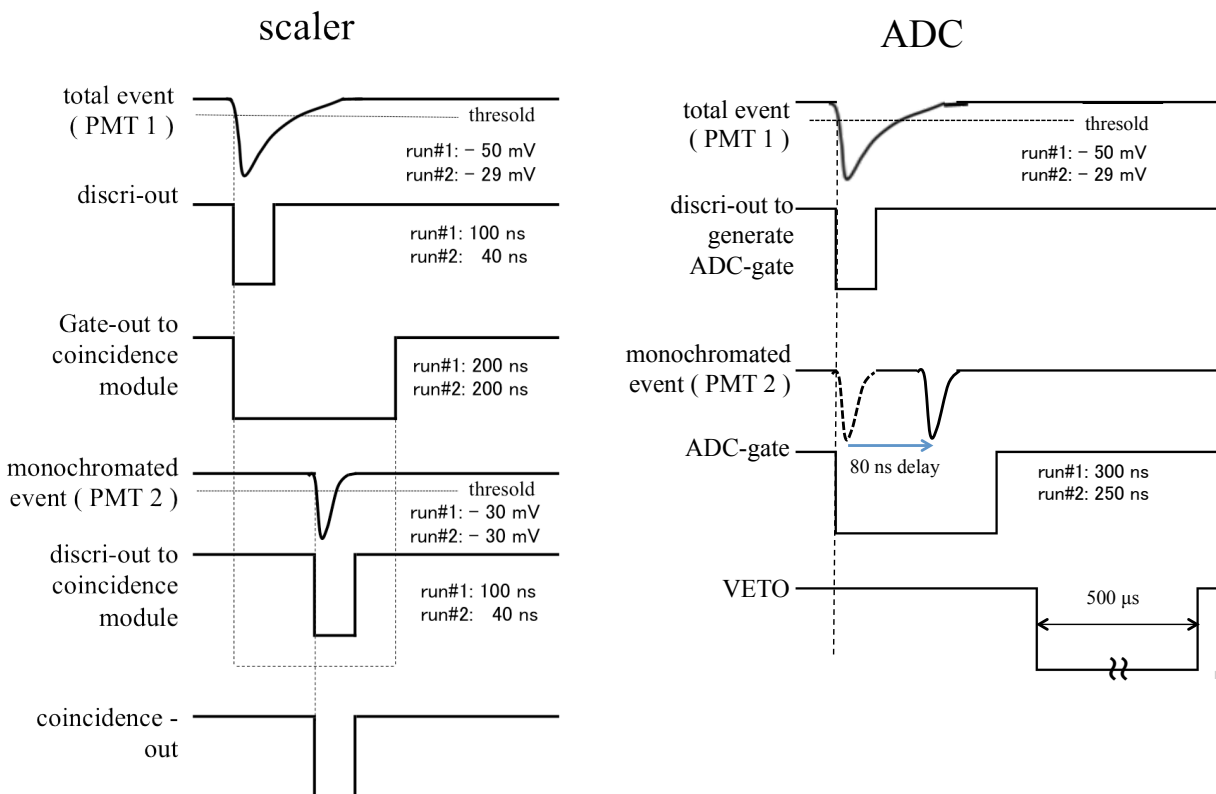


図 3.12 スケーラーと ADC の同時計測のタイミングチャート.

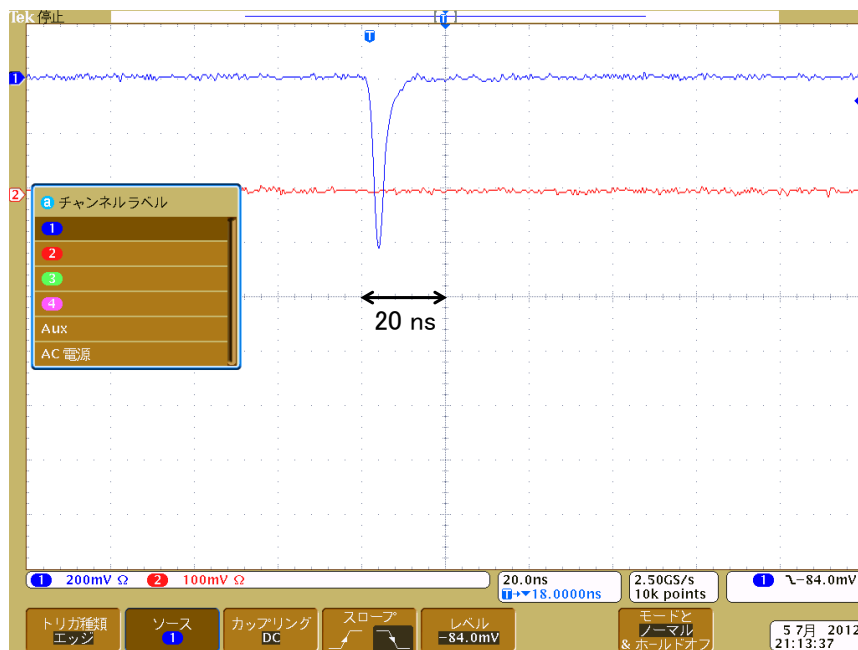
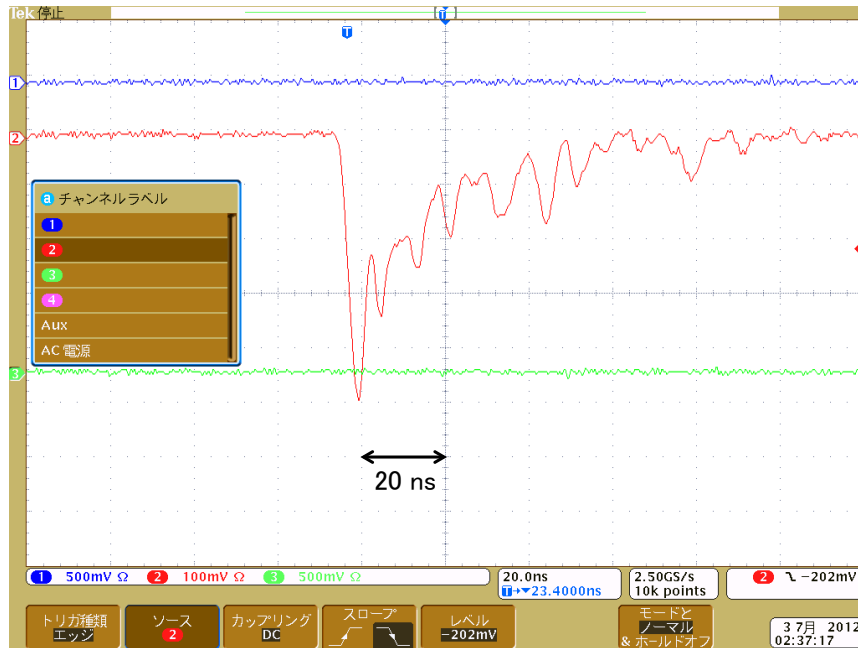


図 3.13 シンチレーション光の典型的な信号（上：直接光，下：分光光）。

4 章 解析

測定でスケーラーから取得したデータと QADC で取得したデータについて、それぞれ個別に解析を行なった。以下では、実験 I で取得したデータを run#1、実験 II で取得したデータを run#2 とする。

4.1 スケーラーのデータの解析

run#1 及び run#2 のうち、スケーラーで取得したデータについて、分光光の計数率と直接光の計数率を図 4.1 に示す。また、分光光と直接光の同時計数の計数率と、偶然同時計数の計数率を図 4.2 に示す。

run#2 では、直接光の信号を入力した波高弁別器のしきい値が、run#1 の -50 mV から -30 mV に下げていたため、run#1 に比べて計数率が増加している。

以上のいずれの計数率にも僅かな変動が見られるが、通常に見られる程度に収まっている。

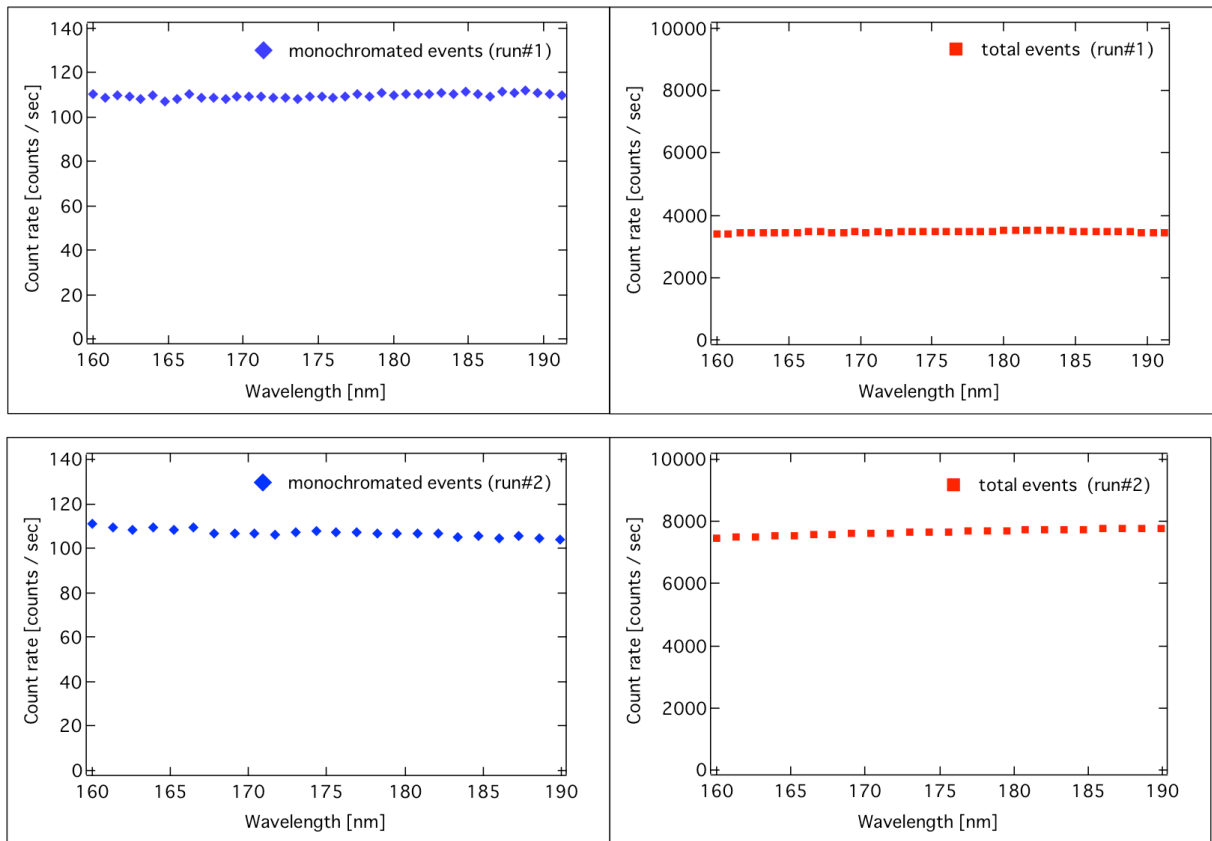


図 4.1 スケーラーで取得した，分光光の計数率（左上が run#1，左下が run#2）と，直接光の計数率（右上が run#1，右下が run#2）。

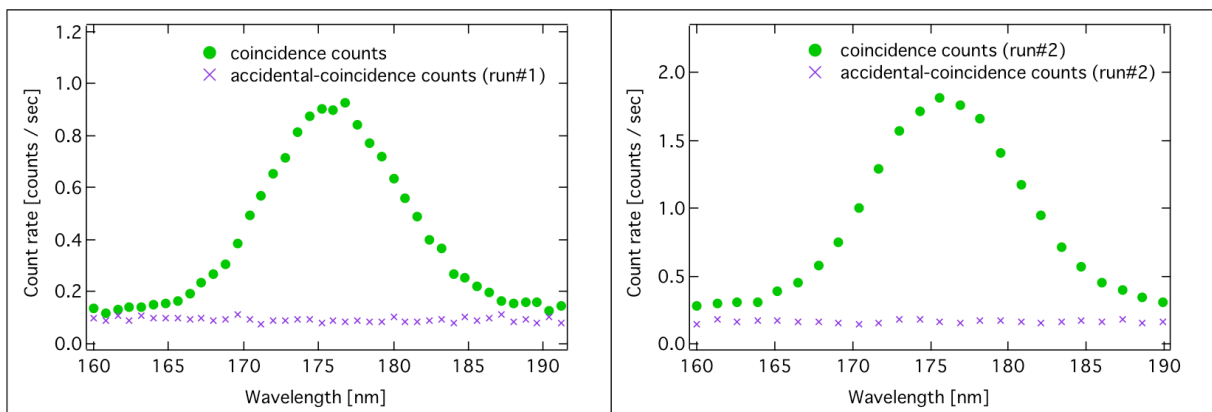


図 4.2 スケーラーで取得した同時計数の計数率と偶然同時計数の計数率．左図が run#1 で，右図が run#2.

4.2 QADC のデータの解析

4.2.1 QADC のゲート信号の発生率と電荷スペクトル

QADC では、直接光を検出したタイミングで、かつ、直前の直接光検出に伴う $500\mu\text{s}$ の VETO 信号の後であれば、QADC のゲート信号が入力されるようにした。この QADC のゲート信号の発生率と、直接光の信号を入力した波高弁別器の出力信号の計数率を、図 4.3 に比較して示す。

run#1 および run#2 において、発光スペクトルのピーク波長付近と考えられる波長と、ピークから離れた波長において測定した、QADC で取得した電荷スペクトルを図 4.4 及び図 4.5 に示す。

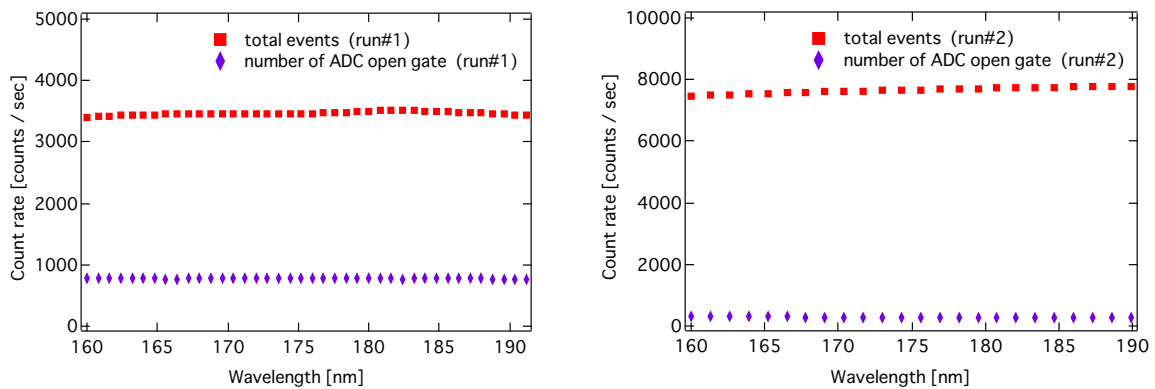


図 4.3 直接光の計数率と QADC のゲート信号の発生率. 左が run#1 で、右が run#2.

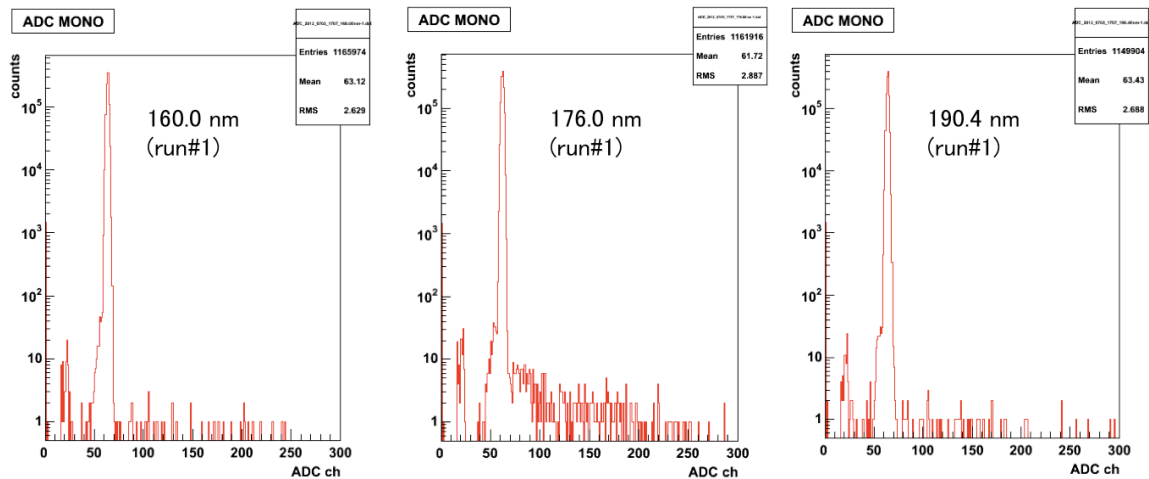


図 4.4 run#1 で取得した QADC の電荷スペクトルの例.
左から、160.0 nm, 176.0 nm, 190.4 nm で測定した。

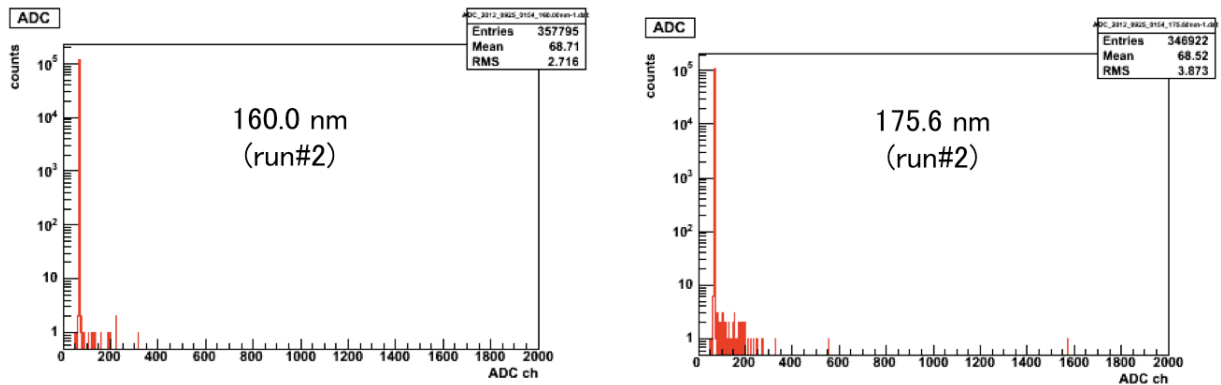


図 4.5 run#2 の電荷スペクトルの例. 左は 160.0 nm, 右は 175.6 nm において測定した.

4.2.2 QADC の利得の測定

用いた QADC について, 入力電荷量と出力チャンネルの関係を測定した. ファンクションジェネレータを用いて様々な電荷を発生させ QADC に入力するとともに, QADC へ入力するゲート信号の生成にも用いた. 測定に用いた回路を図 4.6 に示す. また, 得られた入力電荷量と出力チャンネルとの関係を図 4.7 に示す.

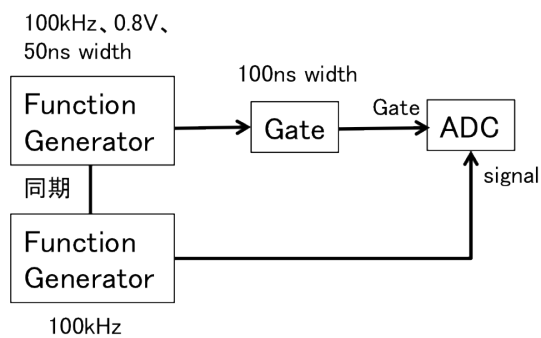


図 4.6 QADC 校正実験に用いた回路系.

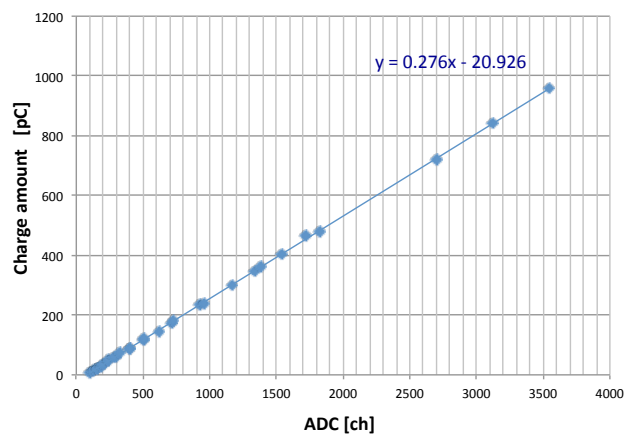


図 4.7 QADC の出力チャンネルと入力電荷量の関係.

図 4.7 より、QADC のチャンネル当たりの電荷量は 0.276 pC/ch と求まった。また、ゲート幅が 100 ns のときのペDESTALは、 75.8 ch となった。

4.2.3 1 光電子レベルの決定と信号選択のしきい値

QADC の 1 光電子に対応するチャンネルを求めるためには、電荷分布を知る必要がある。そこで、run#1 と同じ条件で別に取得した電荷スペクトルと、run#2 で取得した波長毎の電荷スペクトルについて、統計量を上げる目的で波長毎に足し合わせた。具体的には、前者では $170.4\text{--}177.6 \text{ nm}$ の 10 波長分を足し合わせた前者の電荷スペクトル、後者では全波長範囲である $160.0\text{--}189.9 \text{ nm}$ の 24 波長分を足し合わせた。その電荷スペクトルを図 4.8 に示す。

PMT で得られる信号の、典型的な波高スペクトルと、CFD のしきい値に対する計数率[37]を図 4.9 に示す。

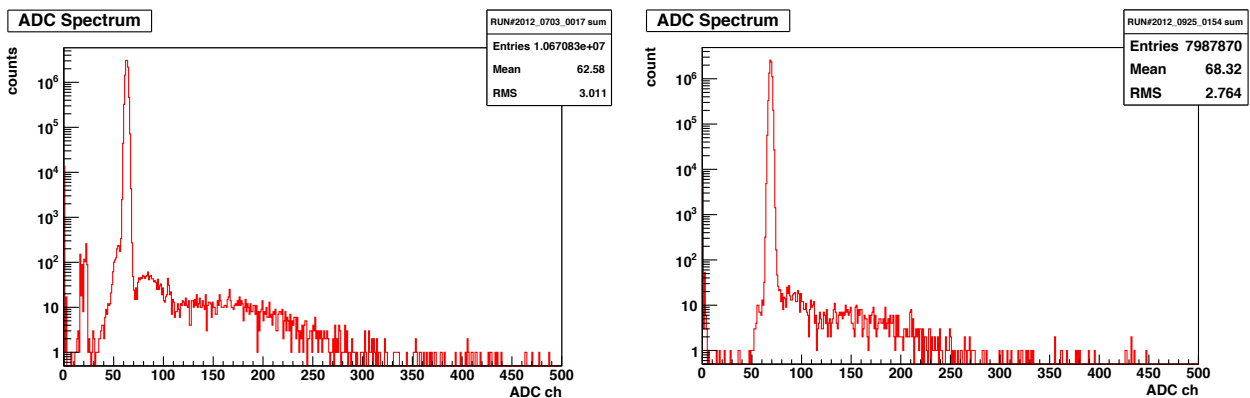


図 4.8 run#1 と同じスリット幅 0.5 mm 、スリット高 16 mm で取得した電荷スペクトル (左) と、スリット幅 0.8 mm 、スリット高 4 mm の run#2 の電荷スペクトル (右)。

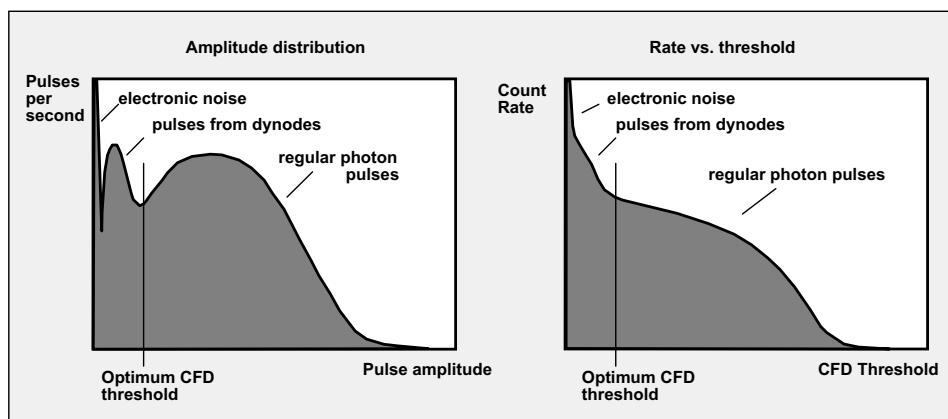


図4.9 PMTで得られる典型的なパルス波高分布（左）とCFDのしきい値に対する計数率（右）。
文献[37]より引用。

図 4.9 の左図のように、PMT 出力の波高分布は主に 3つの成分からなる。一つは図中で“regular photon pulse”と示されている成分で、比較的波高値が高く幅が広いピークをなす。これは光電陰極で発生した光電子が起源のパルスによるもので、発生した光電子が引き続き正常に増幅されたイベントの信号である。二つ目の成分は、図中の“pulse from dynodes”で示された低い波高値のピークで、初段のダイノードで一次電子が弾性散乱したり光電子放出や熱電子放出が起きたときに生ずるパルスで、ダイノードパルスと呼ばれる信号によるものである。この場合、標準的な信号生成の場合と異なり、光電子が初段のダイノードで増幅されることがないため、標準的な信号に比べて数分の一のパルス高になる。三つ目の成分は、図中に“electronic noise”と示されたもので、測定環境や使用する電子回路に起因するノイズで、特にペDESTALの幅の広がりにより顕著に現れる。

実際に得られた図 4.8 では、2つの電荷スペクトル共に、ダイノードパルス起源と考えられる構造が 80-100ch 辺りに見られる。本研究では、発光スペクトルの精密な測定を目的としているため、統計量を増やすために、信号を選択する上で設けるしきい値は、ダイノードパルスも含むようにした。その詳細は本節に後述する。

図 4.8 の run#1 と run#2 の電荷スペクトルには僅かな差が見られたため、各測定と同時期に測定した電荷スペクトルを用いて 1 光電子相当の電荷量を決定した。

1 光電子相当の電荷量を具体的に決めるため、2 光電子以上の多光子事象を観測した電荷スペクトルを用い、多重ガウス分布を当てはめる方法を用いた。多重ガウス分布とは、ポアソ

ン分布で表される光電子の個数の揺らぎと、PMT 内の増幅に伴う電子数の広がりを表すガウス分布を畳み込んだ分布で、以下の関数で表される[38]。

$$f(x) = (P_0) \times \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{e^{-P_1}}{n!} (P_1)^n \times \frac{1}{\sqrt{2\pi n(P_2)}} e^{-\frac{(X-(P_3) \times n - P_4(\text{pedestal}))^2}{2n(P_2)^2}} \right) \quad (4.1)$$

ここで、 $P_0 \sim P_4$ のパラメータはそれぞれ、 P_0 : 規格化定数、 P_1 : 平均の光電子数、 P_2 : 1 光電子の増幅に伴う広がり σ 、 P_3 : 1 光電子に相当するピークのチャンネル、 P_4 : ペDESTALに相当するチャンネルである。

run#2 については、データを取得した直後に、スリット幅を 1.5 mm に広げ、波長を 176 nm に設定して、7,500 秒取得した電荷スペクトルのデータを用いて (4.1) 式のフィッティングを行なった。その結果を図 4.10 に示す。

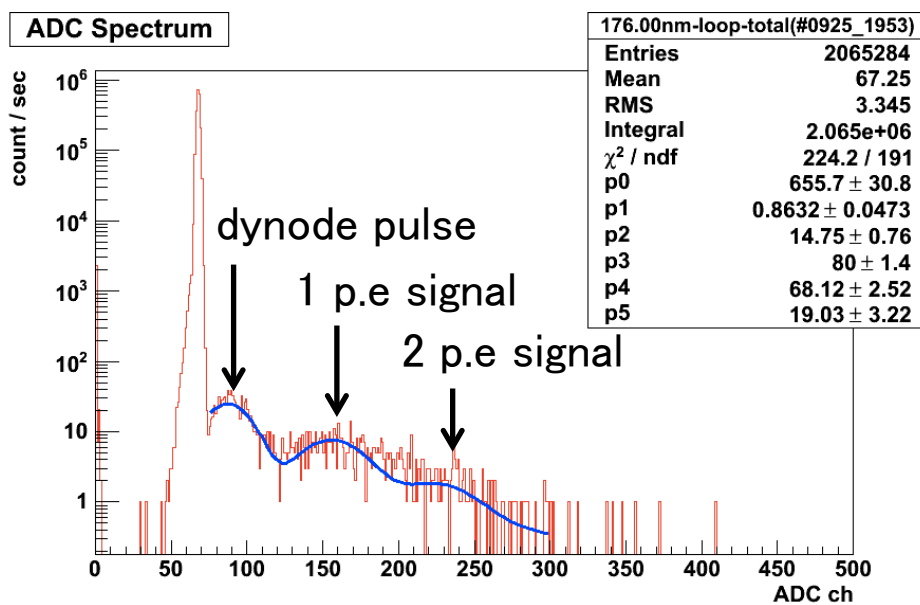


図 4.10 電荷スペクトルへの多重ガウスフィッティング。

フィッティングの結果から、run#2 における 1 光電子相当のチャンネルは、

$$P_3 + P_4 = (148.1 \pm 2.9) \text{ ch}$$

と求めた。

run#1 における 1 光電子のピークの決定は、同じ条件でスリットを広げて長時間取得したデータを取得しなかったため、同一の回路系で、約 403 nm にピークを持つレーザーパルス光源を使って、run#1 の取得時と同じスリット幅及びスリット高さに設定して求めた。単一光子事象を測定したと考えられる形状の電荷スペクトルから、その 1 光電子のピークをガウスフィッティングすることで、

$$160.5 \pm 9.8 \text{ ch}$$

と求まった。

次に、ダイノードパルスの電荷以上の信号を取得するためのしきい値を決めるため、分光光を検出する PMT 自身の信号で QADC のゲート信号を生成するセルフモードでの測定を行ない、ペDESTAL を含まない電荷スペクトルを取得した。この測定の回路系を図 4.11 に、得られた電荷スペクトルを図 4.12 に示す。

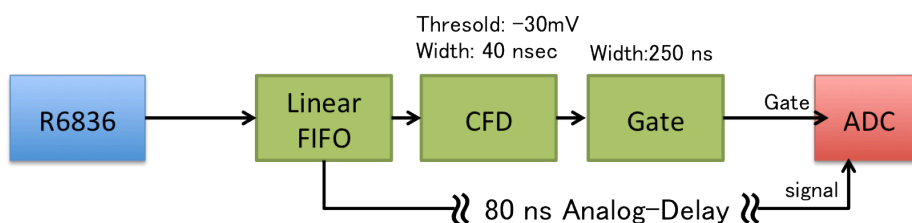


図 4.11 分光光検出用 PMT でセルフモードでの取得に用いた回路系。

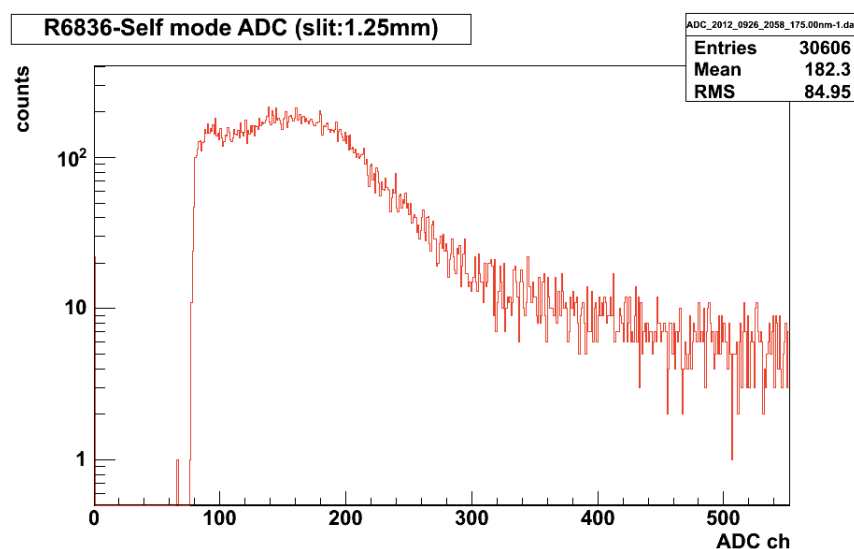


図 4.12 分光光検出用の PMT 2 のセルフモードで測定した電荷スペクトル。印加電圧は 1450V、スリット幅は 1.25mm、スリット高は 16mm で、スキャン波長は 175nm、計測時間 600 秒で取得した。

図 4.12 では、80 ch 付近にあったペDESTALのピークが消え、また、95 ch 付近にダイノードパルスのピークがあることが確認できた。これは図 4.8 における run#2 のペDESTALのピークとダイノードパルスのピークの境界の存在と符合している。以上より、QADC のチャンネルのしきい値を run#1 では 75ch, run#2 では 80 ch とし、それ以下のイベントはノイズとして除くこととした。

次に、1 光電子の分布のピークの位置、及び QADC チャンネルのしきい値に対する光電子レベルを確認するため、PMT 2 の HV 特性の測定を行なって算出した増幅率と、浜松ホトニクス のデータシートにある増幅率の値との比較を行なった。

測定には、約 355 nm に発光のピークを持つ LED (以下、紫外 LED) からのパルス光を用いて、印加電圧を変化させながら電荷スペクトルを QADC により取得した (図 4.13) 。このうち、1 光電子の分布のピークが確認できた 1,350 V 以上の電圧におけるペDESTALピークと 1 光電子のピークの QADC チャンネルをフィッティングにより求め、双方のピークチャンネルの差から、4.2.2 節に前述の電荷換算値 0.276 pC/ch を用いて 1 光電子の平均的な電荷量を求め、素電荷で割ることで、印加電圧に対する増幅率を求めた (図 4.14) 。

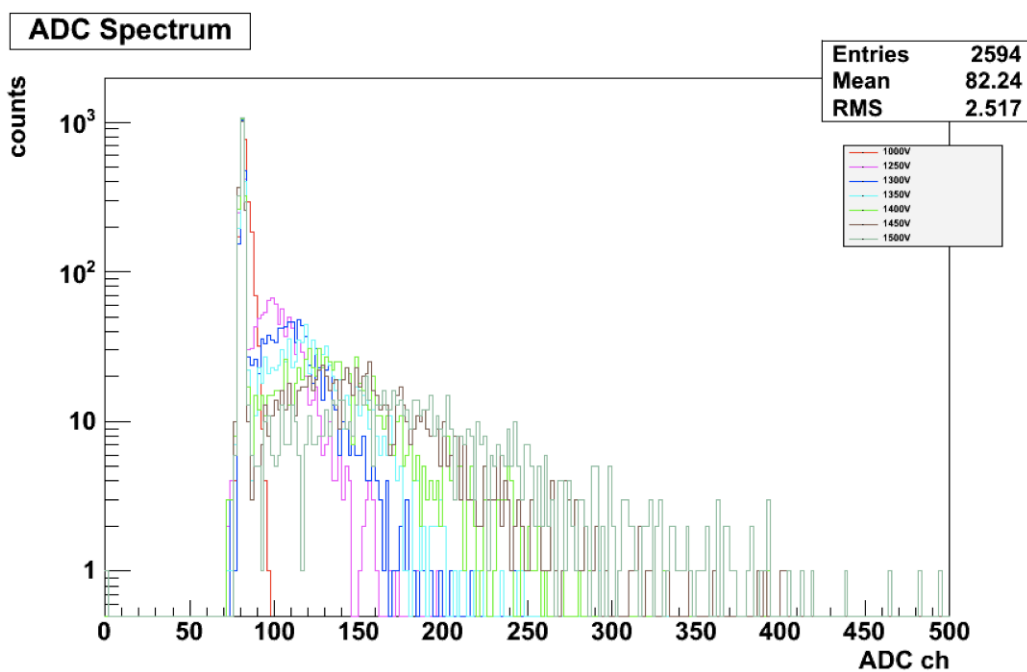


図 4.13 PMT2 の印加電圧を変えて取得した紫外 LED の信号の電荷スペクトル。

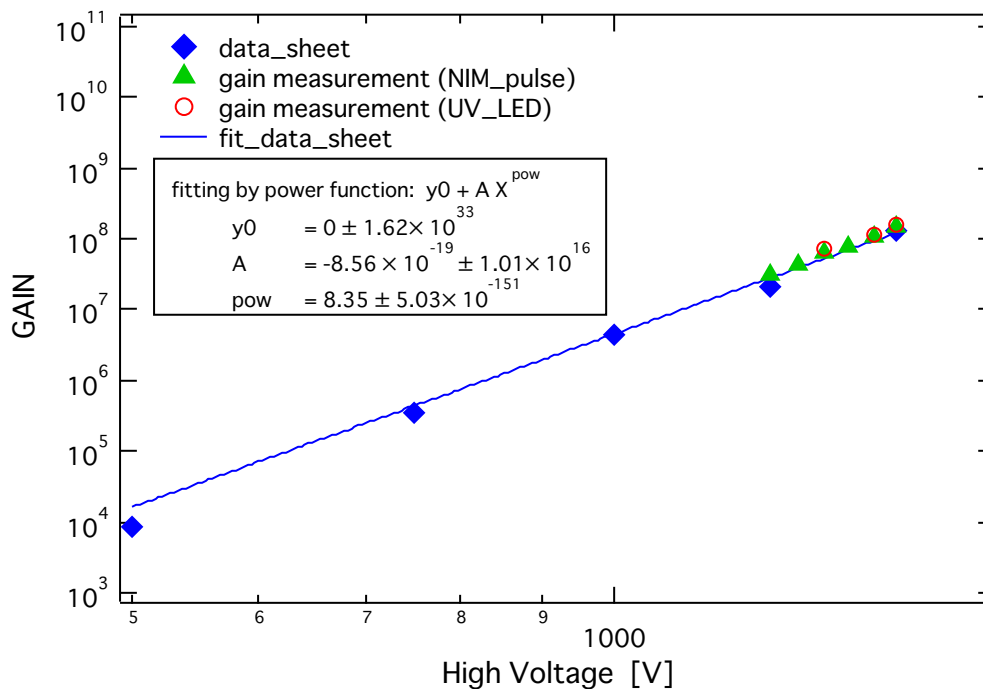


図 4.14 HV 特性の測定結果とデータシート (220 nm で測定) との比較.

図 4.14 で、液体キセノンの測定で使用した 1,450V での増幅率に着目すると、紫外 LED の測定結果とデータシートの結果がほぼ一致している。紫外 LED での 1 光電子のピークは 152.8 ch であったので、run#2 と同じスリット高さで測定した図 4.10 における多重ガウス分布によるフィット結果で 1 光電子ピークが 148.1 ± 2.9 ch であったことは妥当である。このピークのチャンネルと QADC 校正実験の結果を用いると、run#2 で設定したしきい値 80 ch は光電子レベルに換算すると 0.062 光電子レベルとなった。同様に、run#1 の測定と同時期に同様の回路系を使って、約 403 nm にピークを持つパルス光源を用いて測定し算出した HV 特性の値を用いると、run#1 で設定したしきい値の 75 ch は、約 0.04 光電子レベルと推定される。これにより、QADC で、十分に 1 光電子レベル以下で、かつ、ペダスタルのピークを含まないしきい値を設定し、信号からノイズを効率良く除いて発光スペクトルを取得することが可能になった。

4.3 スケーラーと QADC で取得した光量補正前のスペクトルの比較

スケーラーのデータについては、波長毎の同期信号の計数から、偶然同期信号の計数を差し引いて、スペクトルを得た。

次に、QADC で波長毎に得られた電荷スペクトルから、ペDESTALを除いた計数を積算することで、各波長でのイベント数を算出しスペクトルを求めた。積算する ADC 値の範囲は、1 光電子イベント以外のわずかなノイズや 2 光電子イベントを除くため、run#1 では 75–250 ch, run#2 では 80–300 ch とした。実際、run#2 の全波長足し合わせた電荷スペクトル（図 4.8）でも、1 光電子以外の事象が殆どないことを確認している。

以上の、スケーラーと QADC で取得したそれぞれの光量補正前の発光スペクトルについて、run 毎に比較したものを図 4.15 に示す。また、run#1 と run#2 からの補正前の発光スペクトルを、スケーラーと QADC それぞれ毎に比較したものを図 4.16 に示す。それぞれの図中には、スペクトルの形状をガウス関数であてはめたときの最適値も示した。

なお、発光スペクトルについて、1.1.4 節で述べたように、スペクトルの起源であるエネルギー準位間の遷移について議論するならば、波数表示で発光スペクトルを扱う必要があり、横軸を波数とすることが望ましいが、図 4.15 と図 4.16 では、発光スペクトルの概形を確認し比較することを目的としたので、波数に直さずに実用上扱いやすい波長で表示した。

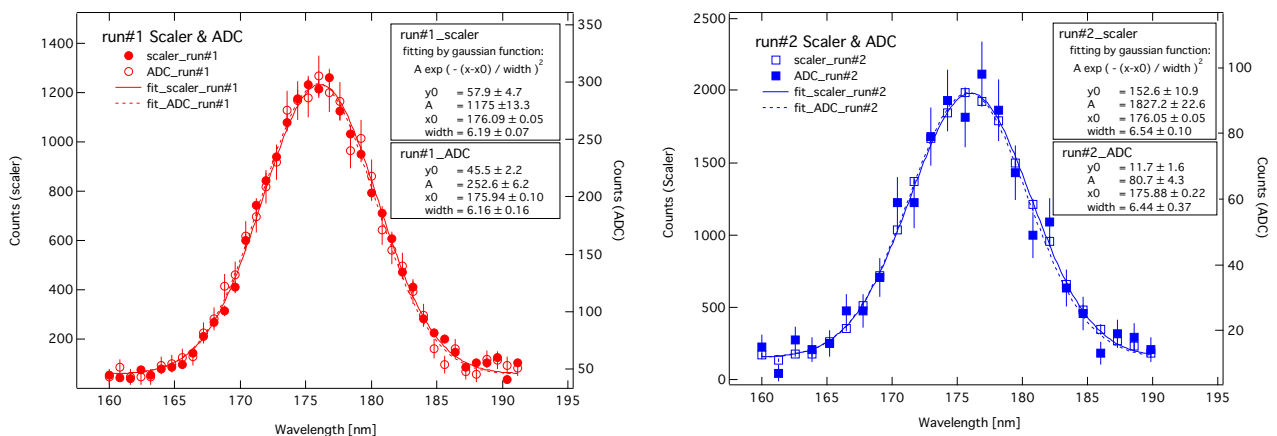


図 4.15 run#1 による補正前の発光スペクトルと、run#2 による光量補正前の発光スペクトル。

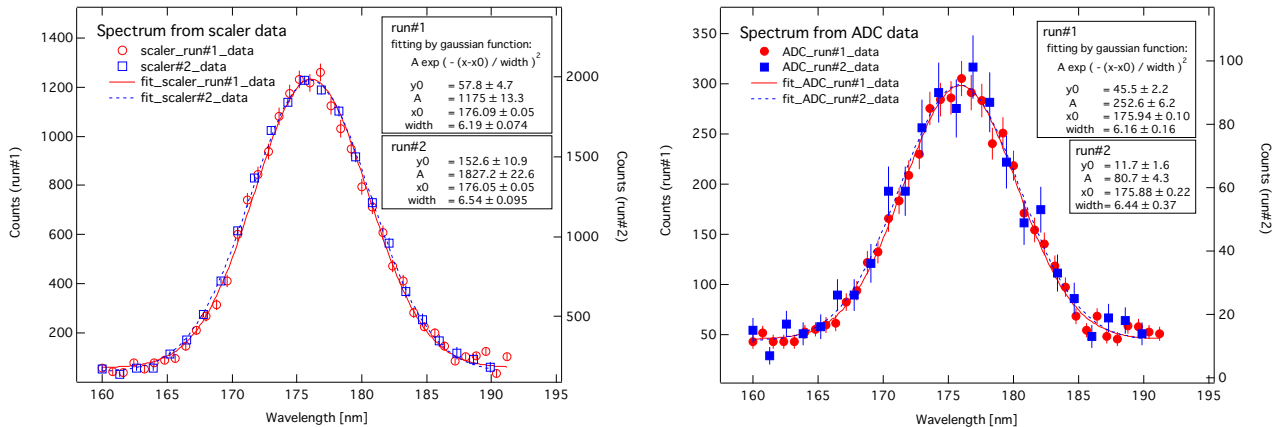


図 4.16 スケーラーと QADC のそれぞれでの、run#1 と run#2 の光量補正前の発光スペクトル（左がスケーラーによるもので、右が QADC に基づくもの）。

QADCとスケーラーで得た発光スペクトルを図4.15で比較して分かるように、ピークを中心波長もピークの幅も、run#1, run#2共に誤差の範囲内で一致した。

QADC及びスケーラーで取得したスペクトルの、ピークとオフピークの波長での同時計数の計数率、液体キセノンの有り無しでの同様の計数率、線源の有り無しでの同様の計数率、および、それらから算出したSN比の一覧を表4.1に示す。なお、SN比の算出は、ピークとオフピークでの同時計数の計数率からバックグラウンドの計数率（液体キセノン有りで線源無し、液体キセノン無しで線源有り、液体キセノンも線源も無し、の3つの場合の和）を差し引き、さらに、ピーク波長の計数率からオフピークでの計数率を差し引いた差を、オフピークの計数率で割って求めた。スケーラーとQADCでのSN比はそれぞれ、run#1では7.1, 6.1, run#2では6.0, 20.6となった。run#1では、スケーラーとQADCであまり差がないSN比になっているが、run#2では、QADCのSN比が3.4倍程度高くなっている。これは、run#2では直接光のCFDのしきい値を下げ、COINに送るCFDのNIM信号の幅を狭くし、QADCのゲート幅も狭くした影響が表れているためと考えられる。

以上より、QADCのデータではオフラインでノイズを除いた1光電子レベルの領域のデータのみ用いて解析することができることから、run#1とrun#2のQADCで取得したデータを使って、解析を進めることとした。

表 4.1 液体キセノンと線源の有無と同時計数の計数率, および SN 比.

			コインシデンスのカウントレート (run#1)				コインシデンスのカウントレート (run#2)			
			scaler		ADC		scaler		ADC	
	Liquid Xe	線源	ピークのカウントレート [Hz]	裾野のカウントレート [Hz]	ピークのカウントレート [Hz]	裾野のカウントレート [Hz]	ピークのカウントレート [Hz]	裾野のカウントレート [Hz]	ピークのカウントレート [Hz]	裾野のカウントレート [Hz]
Signal	○	○	0.93	0.12	0.20	0.029	1.81	0.28	0.072	0.003
Background	○	×	0.002	0	0	0	0.000	0.003	0	0
	×	○	0.003	0.003	0	0	0.000	0.017	0	0
	×	×	0	0	0	0	0.000	0	0	0
Signal - Background			0.92	0.11	0.20	0.03	1.81	0.26	0.07	0.003
SN比			7.1		6.1		6.0		20.6	

4.4 瀬谷波岡型分光器VM-502の特性

本研究で使用した分光器VM-502-Sは、収差補正凹面ホログラフィックグレーティングを用いて設計されており、図4.17の左図のように、グレーティングを凹面の表面中心を回転中心軸として波長掃引をすることから、入射光の波長によって分解能が大きく変わる。

この分光器は、重水素ランプのライマン・アルファ線の 121.6 nm の輝線でその焦点が調整され、121.6 nm 近辺で、スリット幅 0.01 mm のときに分解能 0.12 nm という性能が出るようになっている。そして、図 4.17 の右図に示したように、水銀灯の 253.7 nm の輝線や、0次光の 0.0 nm では同様のスリット幅でも凹面グレーティングの焦点を外すことになり、分解能は悪くなる。そこで、観測したスペクトルの幅をきちんと求めるには、使用する波長に近い輝線を使って、実際のスリット幅による広がりを求める必要がある。

真空紫外領域にある液体キセノンの発光波長に近い光源で校正をするために、本研究では低圧水銀灯の 184.9 nm の輝線を用いた。この水銀灯の輝線を用いた補正については、次節の 4.5 節で述べる。

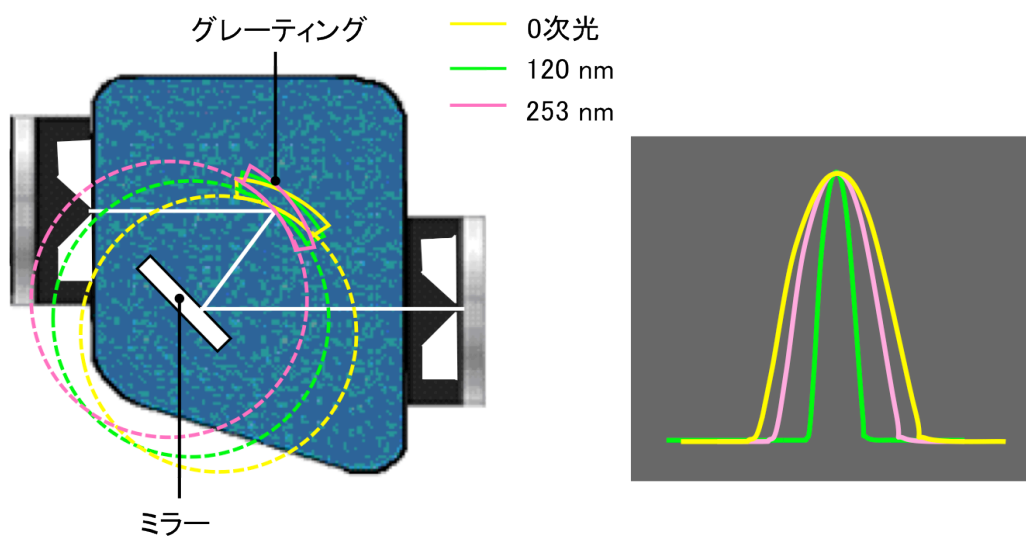


図 4.17 収差補正凹面ホログラフィックグレーティングを用いた瀬谷波岡型分光器の分解能.

なお、本研究で用いた分光器については、メンテナンス会社によって、本研究の測定を行なう約 1 年前に低圧水銀灯を用いて校正を行なっている。具体的には、波長を校正した際の水銀灯の 184.9 nm の輝線を、スリット高が 4 mm，スリット幅が 0.10 mm の条件で、0.05 nm 間隔で波長スキャンして取得して輝線のスペクトルを取得した。その結果を図 4.18 に示す。スペクトルのピーク波長は 185.05 nm となったので、このスリット条件での波長のシフトは +0.15 nm であった。

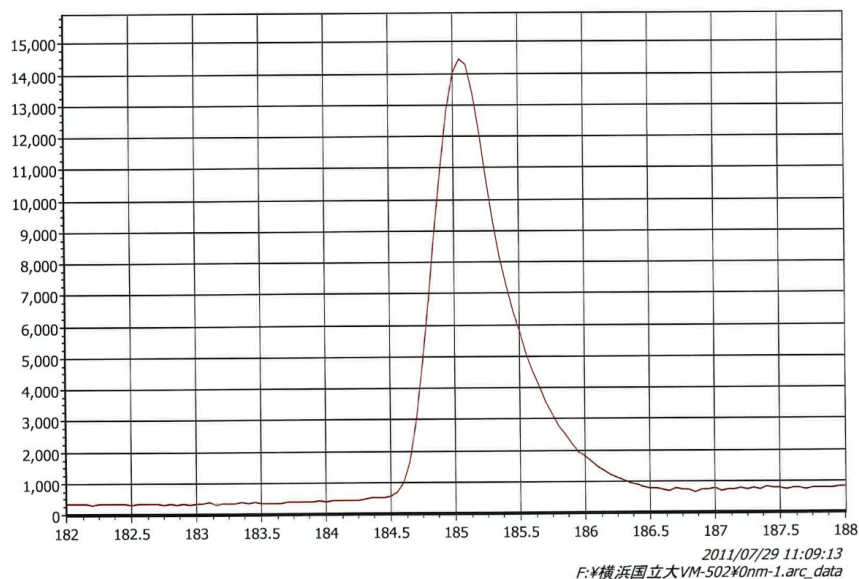


図 4.18 分光器によって得られた低圧水銀灯の 184.9 nm の輝線スペクトル.

液体キセノンの発光スペクトルを測定する実験を行なうには、分光器のスリットの条件に依存する波長のシフトや、スリットに依らない固有の誤差などを正確に把握する必要がある。そこで、スリット高とスリット幅の条件が run#1 および run#2 の場合について、対応する波長のシフト量を実測した。それらを行なった結果を次節以降で述べる。

4.5 波長の誤差の評価

液体キセノンの正確な発光波長の中心値と幅を求めるため、低圧水銀灯の 184.90 nm の水銀原子の輝線を使って、光子同時計数により実験系の校正を行ない、分光器固有の波長のシフト量と、スリット幅に依存する波長分解能を求めた。液体キセノンの発光波長に関する先行研究では文献に基準光源による校正の記述がないため、我々の実験では校正を行ない明示することによって、より信頼性のある結果を示すこととした。

4.5.1 低圧水銀灯の輝線スペクトルの測定

低圧水銀灯の 184.9 nm の輝線は光量が多かったことから回路系から AMP を外したが、それ以外は液体キセノンの発光スペクトルを測定した実験と同様の回路系で測定を行なった。

校正用のデータを取得するために必要な条件として、分光器のスリット幅を 0.32–1.25 mm の 5 通りに変化させて輝線スペクトルを取得した。その結果得られた波長表示でのスペクトルは、ガウス関数で良く表すことが出来たので、それぞれのスリット条件でのピーク波長のシフト量と、波長分解能を求めるための幅のデータを取得した。その結果、図 4.19 に示すように、スリット幅が広がるにつれて、ピークの波長がより大きくシフトする結果が得られた。

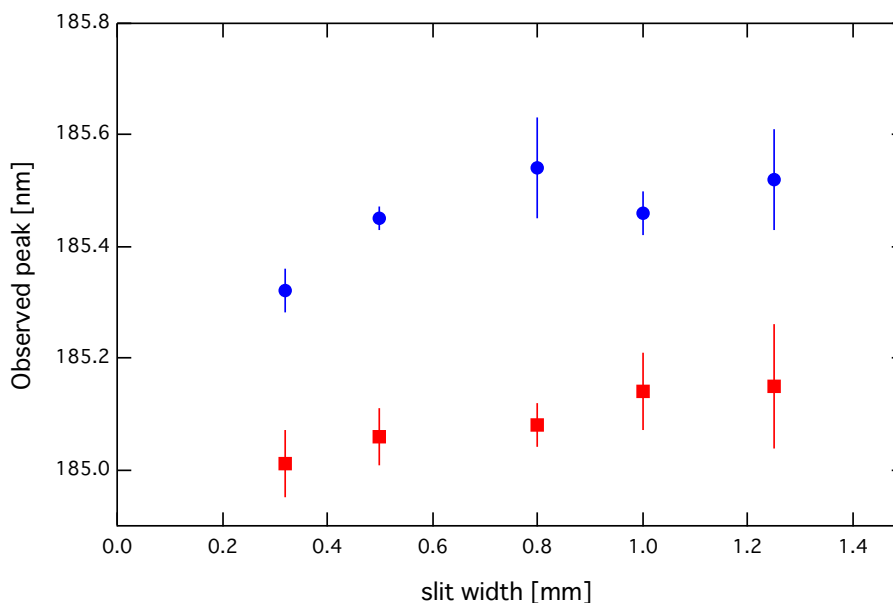


図 4.19 スリット高を 16 mm (○) または 4 mm(□)に固定し、スリット幅を変えたときに測定された低圧水銀灯の 184.9 nm の輝線の波長。

4.5.2 低圧水銀灯のレイ・トレース像を用いたピークのシフトのシミュレーション

水銀灯の輝線の測定で得られたピークのシフトの結果 (図 4.19) から、使用した分光器の波長の誤差を求めるため、スリット幅とシフト量の関係を以下の手順で求めた。

初めに、文献[39]に掲載されている、本実験で用いたものと類似の仕様の真空紫外光用の収差補正凹面グレーティングを持つ瀬谷波岡型分光器 (回折格子: 1,200 G/mm, ローランド円半径: 50 cm, 焦点距離: 25 cm, グレーティングエリアサイズ: 50 mm× 30 mm=1,500 mm²) の 150 nm の光に対するレイ・トレース像 (図 4.20) をトレースし、像の湾曲を記述する関数を求めた。次にこの関数を用いて、我々が測定した条件のスリット高及びスリット幅での像を描き、波長スキャンをした際にスリットから出射する光の量をレイ・トレース像の対応する面積から求めた (図 4.21)。なお、ここで、スリット上における光の強度は一定と仮定した。結果として得られた、スリット高が 16 mm の場合と 4 mm の場合のスリット幅を変化させたときに射出する光量を、分光器の波長の設定値を変化させた場合について、それぞれ図 4.22 と図 4.23 に示す。

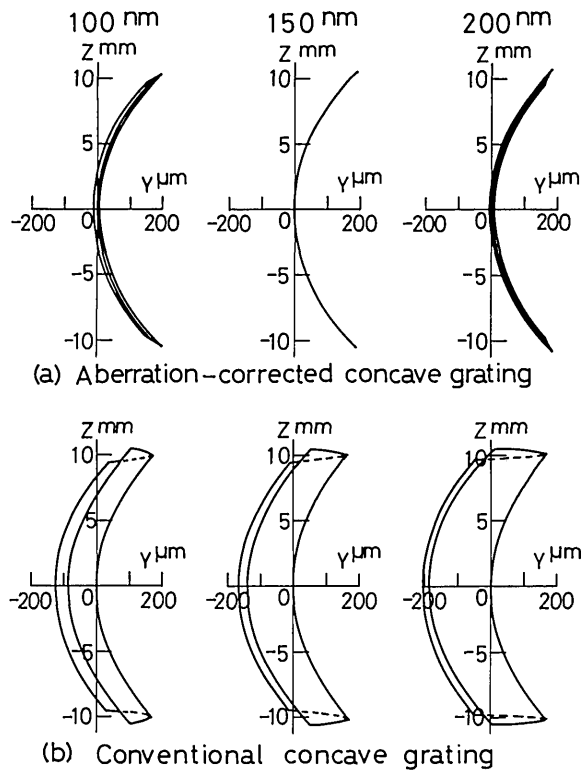


Fig. 11. Ray-traced spectral images obtained with Seya-Namioka monochromator: 1200 g/mm; $R = 500$ mm; $50 \times 30\text{-mm}^2$ ruled area.

図4.20 本研究で使用したものと類似の仕様の瀬谷波岡型分光器のレイ・トレース像[39].

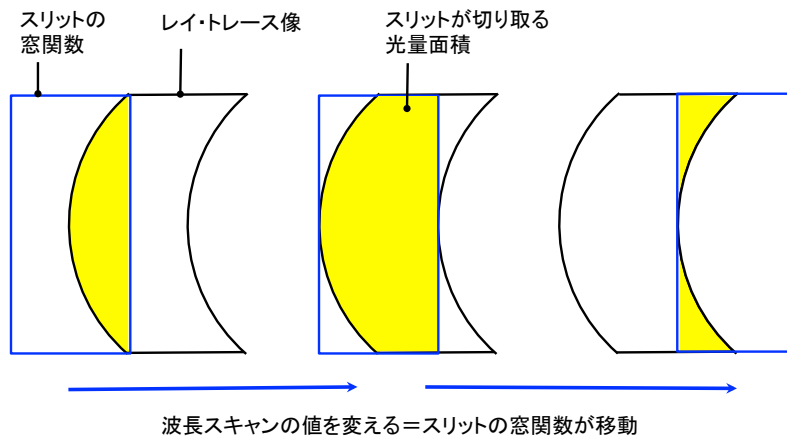


図 4.21 湾曲したレイ・トレース像を用いた出射スリットでの光量の求め方.

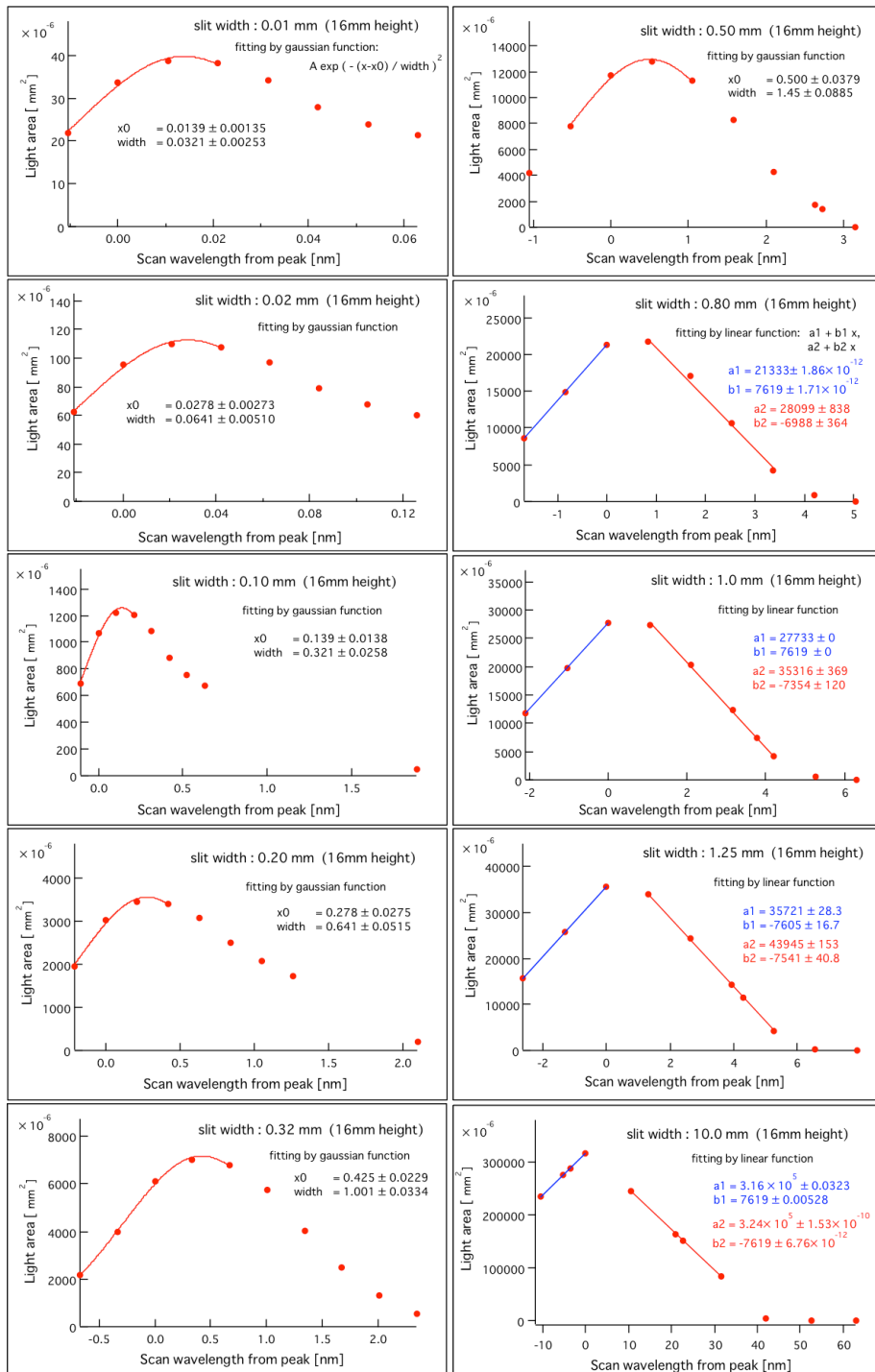


図 4.22 スリット高が 16 mm の場合に出射する光量。左上から右下へ順に、スリット幅が 0.01, 0.02, 0.1, 0.2, 0.32, 0.50, 0.80, 1.0, 1.25, 10 mm.

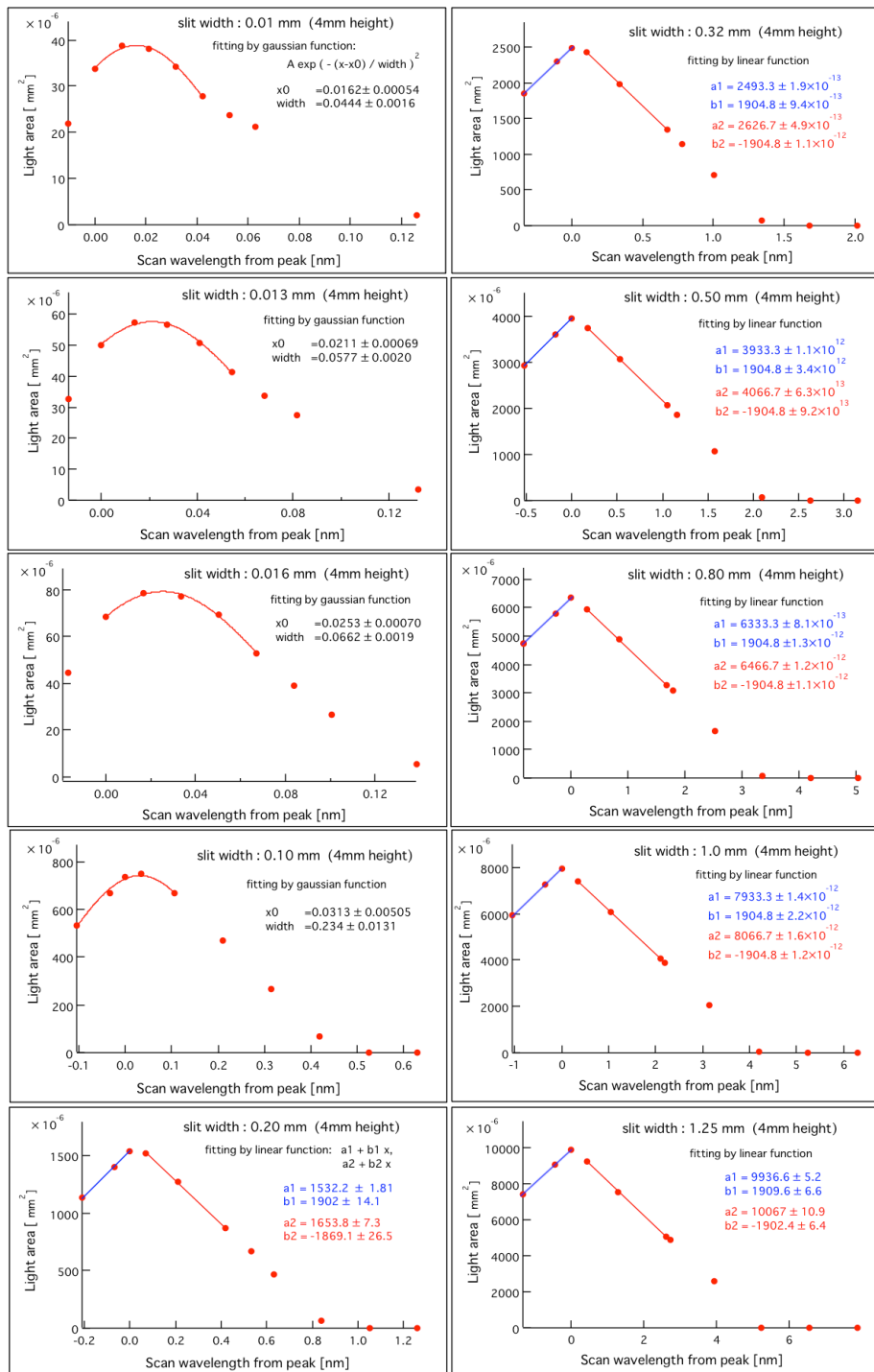


図 4.23. スリット高が 4 mm の場合に出射する光量。左上から右下へ順に、スリット幅が 0.01, 0.013, 0.016, 0.1, 0.2, 0.32, 0.50, 0.80, 1.0, 1.25 mm.

Fig. 5. Characteristic slit functions where the wavelength is negligible in comparison with the mechanical slit width.

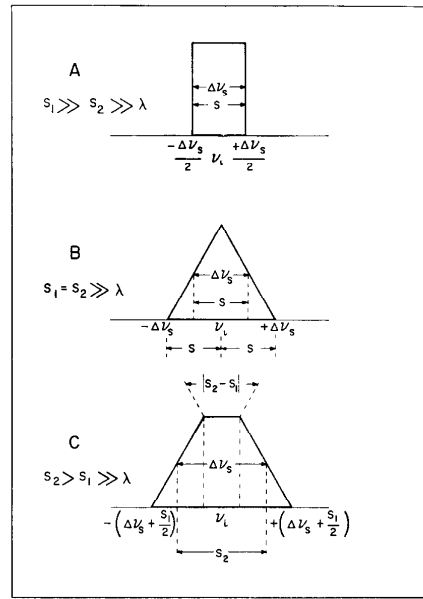


図 4.24 分光器のスリット関数とスリット幅の関係[40].

図 4.22 及び図 4.23 から、光量がピークになる波長はスリット幅が広いときに真の波長値から徐々にずれていることが分かる。光量のピークの形状は、本測定では入射スリット幅と出射スリット幅を等しくしたことから、図 4.24 に示すスリット関数の B の場合に相当する。そこで、波長のシフト量を、ピークの左側と右側の強度関数をそれぞれ直線で近似し、その交点を求めることによって算出した。なお、入射及び出射スリットが等しい幅を持つ場合、本研究の場合のように、像の湾曲による像の変位量よりもスリット幅自身が十分広いようなスリット幅とスリット高の条件になった場合には、スリット関数はやはり図 4.24 の B に見られるような三角型になる。

図 4.22 及び図 4.23 の結果から、スリット幅を広げるにしたがって、シフト量は最初徐々に増加し、やがて一定になる傾向がこのシミュレーションから確かめられた。そこで、シフト量とスリット幅との関係を以下の(4.2)式に示す成長関数で記述し、シフト量のシミュレーション結果のプロットに対してフィッティングを行なった。

$$f(x) = A(1 - e^{-Bx}) + C \quad (4.2)$$

この(4.2)式で、Cはスリット幅に依らない分光器が持つもともとの誤差で、シミュレーションの結果に関してはC=0であることを自明としてAとBの値を求めた。フィッティングの結果、スリット高が16 mmのときはA=0.56, B=(2.95±0.13)mm⁻¹, スリット高が4 mmではA=0.035, B=(69.01±1.99) mm⁻¹となった (図4.25)。

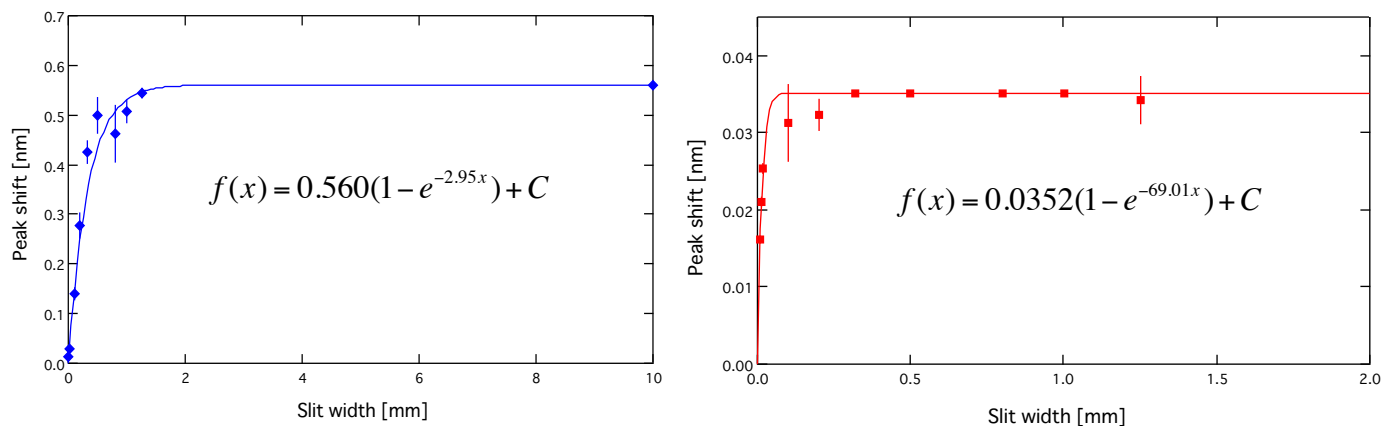


図 4.25 レイ・トレース像の光量から得られた波長のシフト量と成長関数によるフィッティング.
スリット高は、左が 16 mm で、右は 4 mm.

4.5.3 分光器の波長の誤差の算出

前節で求めたAとBの値を用い、Cを未知とした(4.2)式を用いて、本実験で得た水銀灯の輝線のシフト量に対してフィッティングを行って、run#1とrun#2のそれぞれのスリット条件に対してCの値を求めた(図4.26)。その結果、Cの値は、run#2のスリット高が4mmのときは185.04 ± 0.0251 nmとなり、またrun#1のスリット高が16 mmのときは184.99 ± 0.018 nmとなって、両者は誤差の範囲内で一致した。そこで、両者の値の荷重平均を求めると、Cの値は185.01 nmとなって、水銀灯の輝線の真の波長184.9 nmから分光器によるシフト量は0.11 nmであることが分かった。この値は、仕様に記されている0.1 nmと無矛盾である。

なお、4.4節で述べた、本測定の1年前にメンテナンス会社によって行われた同様の波長測定の結果(図4.18)からは、同じ輝線の波長値が185.05 nmとなっている。そこで、当時のスリ

ット条件のスリット高が4 mm, スリット幅が0.10 mmを図4.26から得られた式に適用すると, 対応する波長は185.045 nmとなるので, その差は0.005 nmでつじつまがあう。

以上により正当性が確認された(4.2)式の成長関数を用いると, run#1のスリット条件に対する波長の真値からのシフト量は+0.54 nmとなり, また同様にrun#2では+0.15 nmとなって, それぞれ長めの値が測定されることが分かった。

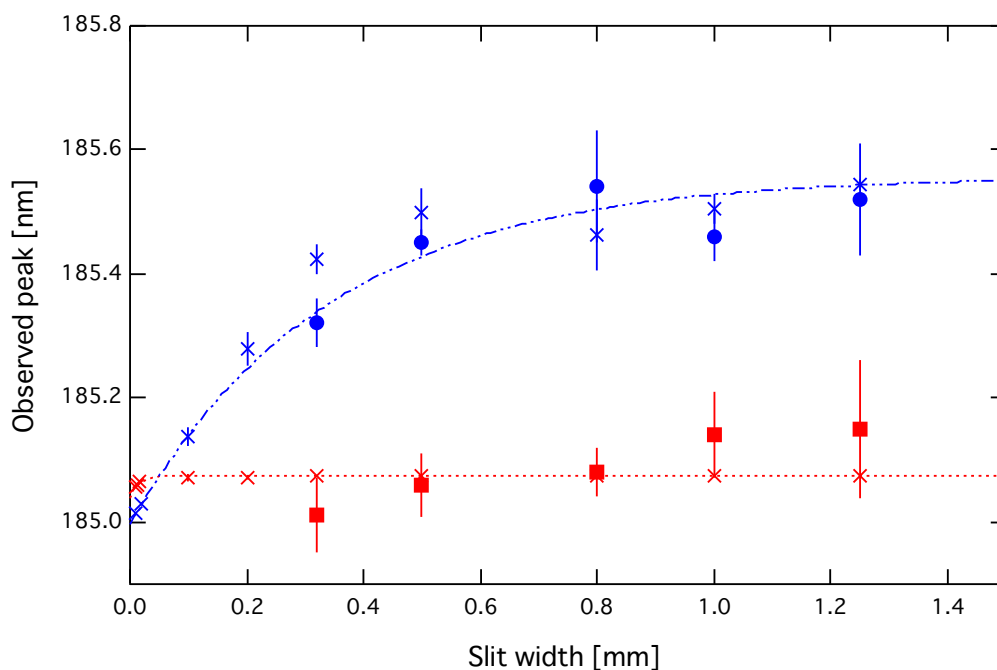


図4.26 水銀の184.9 nmの輝線の実測の波長値とスリット幅の関係。スリット高が16 mm (●) のときと4 mm (■) のときについて示す。曲線は本研究で用いたものと類似の分光器のレイ・トレース像[39]からシミュレーションにより求めたシフト量 (×) のベストフィット。

4.6 光量の補正

QADC で取得したデータから, 各々の波長での分光光のイベントについて電荷分布を取得した。得られた電荷分布から, ペDESTALよりも大きい, ダイノードパルスおよび1光電子に対応するイベントの数をそれぞれの波長毎に数えた。また, run#1 と run#2 の測定中における, 直接光を検出する PMT 1 の計数率の僅かな増減による不感時間の変動の影響を補正するため, QADC のゲートの発生率に基づいて計数を補正して発光スペクトルを求めた。さら

に、バックグラウンドのイベントを取り除くため、発光スペクトルのオフピーク（160 nm や 190 nm 近辺）での電荷分布をバックグラウンドとみなして、ピーク内の各波長での電荷分布から差し引いた。

以上により得られた、各波長 λ における信号の計数 $C(\lambda)$ に対して、以下の式に基づいて、光学系の各構成要素の効率の補正（図 4.27）を行い、波長毎の計数 $N(\lambda)$ を求めた。

$$N(\lambda) = \frac{C(\lambda)}{T(\lambda) \cdot GE(\lambda) \cdot MR(\lambda) \cdot QE(\lambda)} \quad (4.3)$$

ここで、 $T(\lambda)$ は液体キセノン容器の MgF_2 窓の透過率、 $GE(\lambda)$ と $MR(\lambda)$ は分光器の回折格子の効率とミラーの反射率、 $QE(\lambda)$ は分光光を検出する PMT 2 の量子効率である。各効率は、メーカーからそれぞれに供給されたデータを用いた。

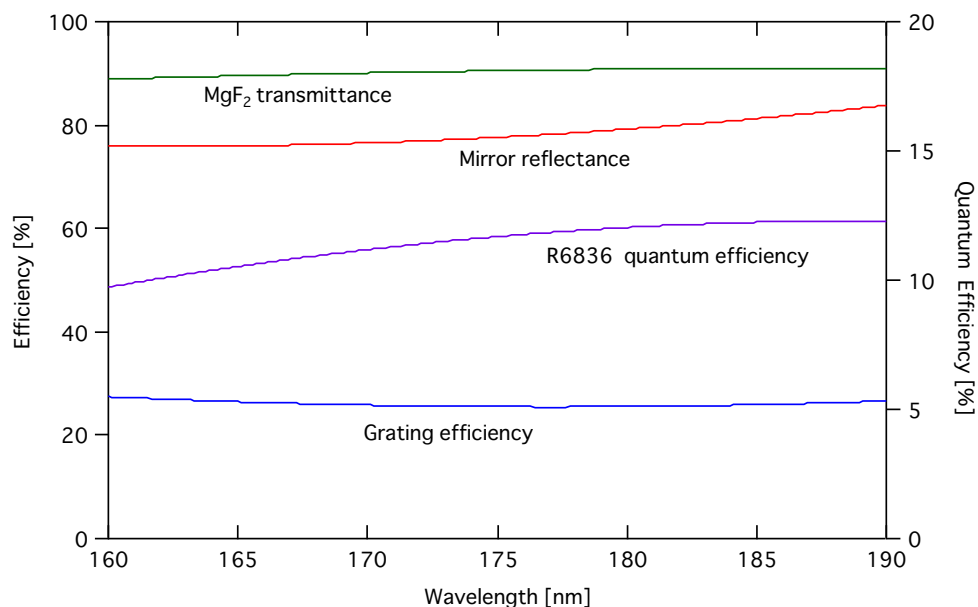


図 4.27 波長に対する光学系の各構成要素の効率： MgF_2 窓の透過率，ミラーの反射率，グレーティングの効率，PMT 2（R6836）の量子効率。

4.7 波長補正後のスペクトル

最終的に、発光スペクトルの表示において横軸をエネルギーとするため、波長に対する計数 $N(\lambda)$ を波数に対する計数 $N'(\nu)$ に変換し、さらに有限のスリット幅による波長のシフトと分光器固有の波長のシフトを補正して発光スペクトルを求めた。

$$N'(\nu) = N(\lambda)/\lambda^2 \quad (4.4)$$

図 4.28 に、run#1 と run#2 から得た液体キセノンの発光スペクトルを示す。

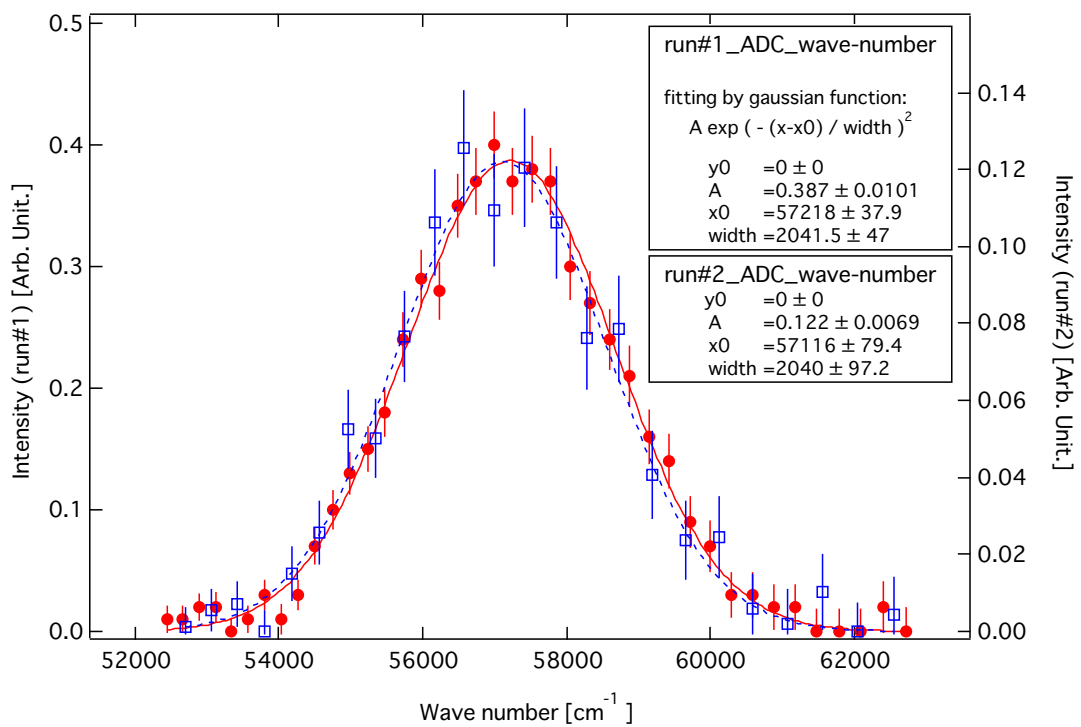


図 4.28. 光量補正後に得られた液体キセノンの発光スペクトル (run#1(●)と run#2(□)) . 有限なスリット幅によるスペクトルの幅への影響は畳み込まれている. 実線は run#1, 破線は run#2 のデータをガウス関数でフィッティングした曲線を示す.

ピークの中心は, run#1 では,

$$57218 \pm 37.9 \text{ (stat.)} \pm 39.3 \text{ (syst.) cm}^{-1}$$

(波長では $174.79 \pm 0.12 \text{ (stat.)} \pm 0.12 \text{ (syst.) nm}$),

run#2 では,

$$57116 \pm 79.4 \text{ (stat.)} \pm 65.2 \text{ (syst.) cm}^{-1}$$

(波長では $175.08 \pm 0.24 \text{ (stat.)} \pm 0.20 \text{ (syst.) nm}$)

という結果が得られた。得られた2つのピーク値は誤差の範囲内で一致しており, run#1 の 110 kPa と run#2 の 117 kPa という圧力の差によるピークの有意なシフトは見られなかった。

4.8 FWHM の補正

図4.28の発光スペクトルのピークの幅には, 分光器の有限のスリット幅に起因する応答関数が畳み込まれている。そこで, 液体キセノンの真の発光スペクトルを取得するためには, 応答関数による広がりを逆畳み込みで差し引く必要がある。キセノンの発光スペクトルの幅はじゅうぶんに狭いことが前節までで明らかになったので, 波数についての応答関数を用いて逆畳み込みを行ない, 続いてガウス関数をあてはめてFWHMを求めた。応答関数としては, 十分に幅の狭い水銀灯の輝線について実測された有限幅を持つスペクトルを用いた。

液体キセノンで測定されたスペクトルと上記の応答関数は, 波数表示で共にガウス型によく近似できることから, 求める真のスペクトル $T(\nu)$ も逆畳み込み後に以下のガウス型のスペクトルとして記述できる。

$$T(\nu) = k \exp\left\{-\frac{(\nu - \nu_l)^2}{2\sigma_l^2}\right\} \quad (4.5)$$

(4.5)式において, パラメータ k, ν_l, σ_l はそれぞれ, 定数, 中心の波数, 分布の標準偏差である。ここで, σ_o と σ_r をそれぞれ, 観測されたピークと分光器の応答関数 $R(\nu)$,

$$R(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_r} \exp\left\{-\frac{\nu^2}{2\sigma_r^2}\right\} \quad (4.6)$$

の標準偏差とすると、応答関数が畳み込まれた観測スペクトル $O(\nu)$ は、 $T(\nu)$ と $R(\nu)$ を用いて以下のように、

$$\begin{aligned} O(\nu) &= \int_{-\infty}^{\infty} T(\nu') R(\nu' - \nu) d\nu' \\ &= \frac{k}{\sqrt{2\pi}\sigma_r} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left\{-\frac{(\nu' - \nu_i)^2}{2\sigma_i^2} - \frac{(\nu' - \nu)^2}{2\sigma_r^2}\right\} d\nu' \end{aligned} \quad (4.7)$$

となるので、観測スペクトル $O(\nu)$ は結局、以下の式、

$$O(\nu) = \frac{k}{\sqrt{1 + \sigma_r^2/\sigma_i^2}} \exp\left\{-\frac{(\nu - \nu_i)^2}{2(\sigma_i^2 + \sigma_r^2)}\right\} \quad (4.8)$$

で表されることから、

$$\sigma_o = \sqrt{\sigma_o^2 - \sigma_r^2} \quad (4.9)$$

が容易に導かれる。

以上により、観測されたスペクトルの標準偏差 σ_o と、測定スリット条件における応答関数の標準偏差 σ_r とから真のスペクトルの標準偏差 σ_i を求めるため、スリット高を16 mmおよび4 mmにして、スリット幅を変えて低圧水銀灯の輝線を観測した。そして、得られたスペクトルを波数表示に換算した後にガウス関数であてはめ、それぞれのスリット条件における波長分解能 ($\approx 2.35 \sigma_r$) を求めた (図4.29)。

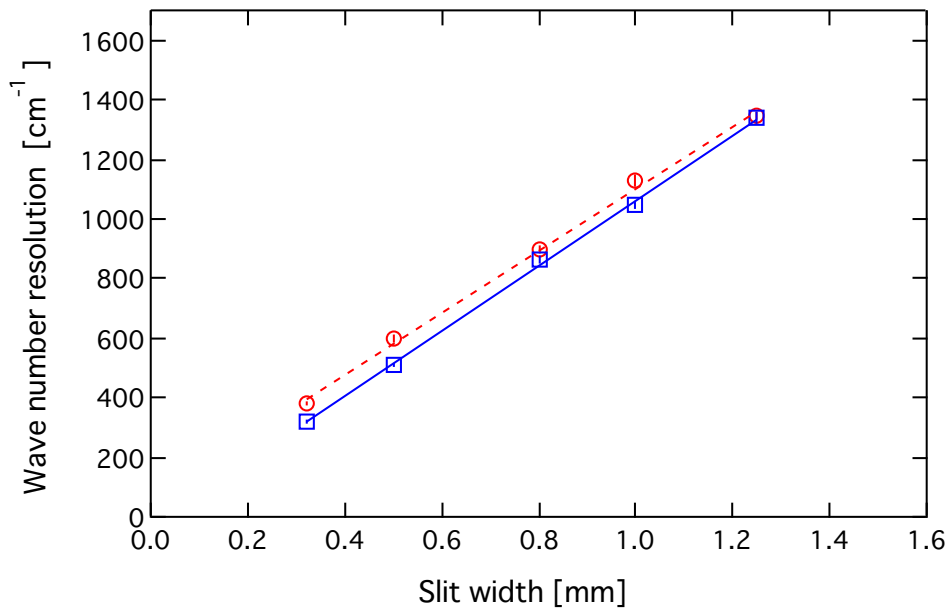


図 4.29 スリット高を 16 mm または 4 mm に設定して低圧水銀灯の輝線を観測することで求めた分光器の波数での分解能.

波数での分解能を実測した結果, run#1 のスリット条件では 599.6 ± 12.6 (stat.) ± 39.1 (syst.) cm^{-1} , run#2 の条件では 864.1 ± 14.4 (stat.) ± 65.2 (syst.) cm^{-1} となった。なお, 逆畳み込みによる中心波長のシフトは無視出来るものとした。

以上の分解能を用いて, 逆畳み込みによって真の発光スペクトルのピークのFWHMを求め, 結果として, run#1 と run#2 のFWHMはそれぞれ,

$$3392.4 \pm 79.5 \text{ (stat.)} \pm 39.3 \text{ (syst.) } \text{cm}^{-1}$$

(波長では, 10.37 ± 0.24 (stat.) ± 0.12 (syst.) nm)

と,

$$3278.3 \pm 167.1 \text{ (stat.)} \pm 65.2 \text{ (syst.) } \text{cm}^{-1}$$

(波長では, 10.06 ± 0.51 (stat.) ± 0.20 (syst.) nm)

という結果が得られた。なお, FWHMの系統誤差は, 水銀灯の輝線を観測した測定でのQADCの電荷分布において, 信号として計数する範囲の下限の不確かさを伝搬させて見積った。

5 章 結果及び考察

5.1 発光スペクトルのピークの中心波長及び FWHM

4.7章で求めたrun#1及びrun#2の発光スペクトルのピークの波数について、各々の誤差の二乗の逆数を重みとして加重平均すると、液体キセノンの発光スペクトルのピークの波数は、

$$57199.0 \pm 34.3 \text{ (stat.)} \pm 32.7 \text{ (syst.) cm}^{-1}$$

となった。この結果を波長に換算すると、

$$174.8 \pm 0.1 \text{ (stat.)} \pm 0.1 \text{ (syst.) nm}$$

となる。

また、4.8章で求めた分光器の装置関数を用い、発光スペクトルをデコンボリューションしてピークのFWHMを求め、各々の誤差の二乗の逆数を重みとして加重平均すると、液体キセノンの発光スペクトルのピークのFWHMは、波数では

$$3371.3 \pm 71.8 \text{ (stat.)} \pm 65.2 \text{ (syst.) cm}^{-1}$$

に、また、波長に変換すると、

$$10.3 \pm 0.2 \text{ (stat.)} \pm 0.2 \text{ (syst.) nm}$$

となった。

以上のように、中心波長とFWHMを明確な誤差とともに求めることができた。この結果を過去の報告と比較すると、これまで最も多く引用されてきたJortner等の報告値であるピーク

の中心波長178 nmとFWHM 14.3 nm[10]は、本研究で得られた結果に比べ中心波長は約3 nm長く、FWHMは約4 nm広い。この違いの原因については明らかではないが、Jortner等の報告は液体キセノンの圧力や温度などを記していないので単純に比較することは出来ず、また分光器の校正や波長の測定誤差についても不明であることから、結果の差異の有意性を議論することも困難である。

一方、中心波長として引用されることがある174 nm [8]という値は、Jortner等が示した値に比べて本研究で得られた中心波長に近く0.8 nm短い。これまで出所が不明で誤差も明らかでないままに用いられてきたことから、やはり違いの有意性を議論することは困難である。

以上のように、本研究で得られた液体キセノンのシンチレーションの発光スペクトルは、そのピークの波長値は従来にしばしば用いられてきた主な2つの値のいずれとも一致せず、それらの間の値となった。また、ピークのFWHMは従来値に比べ小さくなった。そして、そのいずれも、注意深い解析と校正を行なうことにより、信頼出来る正確な誤差を与えることが出来た。

5.2 レイリー散乱長

本研究により求めた発光波長の最新の結果を用いて、現在進行中のXMASS実験の実験条件で液体キセノン中のレイリー散乱長を求めた。レイリー散乱長 L は、(2.7)式より、その逆数 $1/L$ が以下の式、

$$\frac{1}{L} = \frac{8\pi^3}{3\lambda^4} \left[k_B T \kappa_T \frac{(n^2 - 1)^2 (n^2 + 2)^2}{9} \right] \quad (5.1)$$

で求められる。そこで、XMASS実験の実験条件である、圧力が1.6気圧、温度 T が約174Kにおける、液体キセノンの等温圧縮率と屈折率をそれぞれ求めた。

等温圧縮率 κ_T は以下の式で定義され、指定した温度 T における液体キセノンの圧力と体積の関係から求めることができる。

$$\kappa_T = \frac{1}{V} \left(\frac{-\Delta V}{\Delta P} \right)_T \quad (5.2)$$

様々な温度での液体キセノンの圧力と体積の測定結果[41]から、温度が 170, 172, 175, 177K のそれぞれに対する圧力と体積の関係を図 5.1 に示す。図 5.1 が示すように、圧力の低圧側では 70 atm 以下で体積と圧力との間に良い線形関係が見られる。そこで、低圧側から 3 点を用いて体積 V と圧力 P の直線関係 $V=a+bP$ (a と b は定数) を求め (図 5.1), 1.6 気圧における等温圧縮率を求めた。前述の各温度における等温圧縮率を図 5.2 に示す。さらに、この結果を温度についての二次式であてはめ (図 5.2), 174K のときの等温圧縮率 κ_T を $1.85 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{N}$ と算出した。

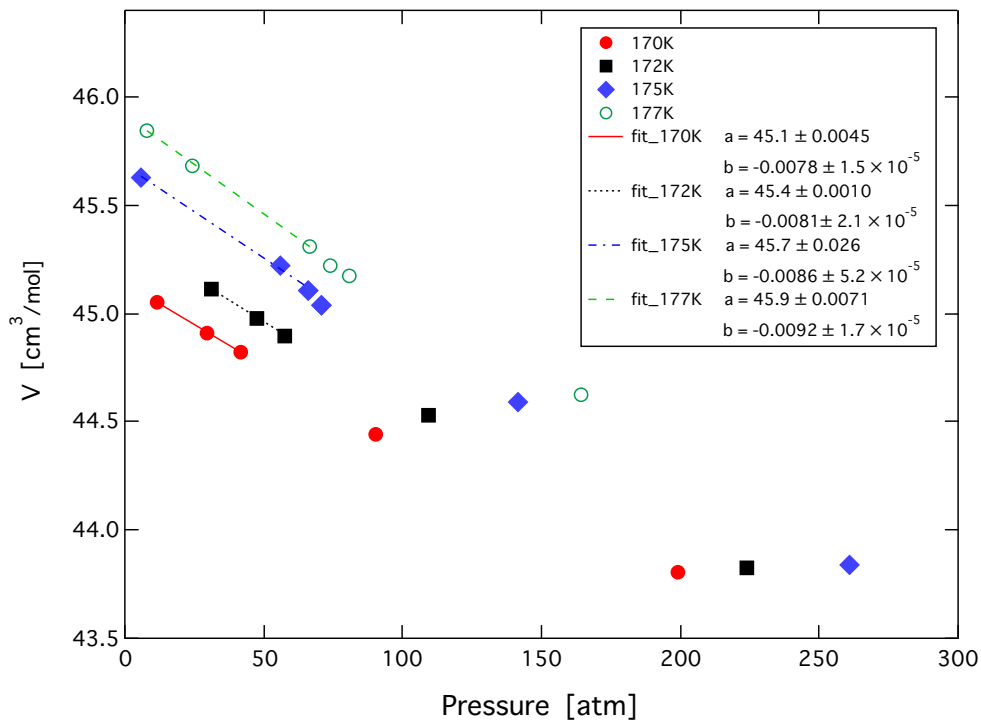


図 5.1 液体キセノンの一定温度における圧力と体積の関係。

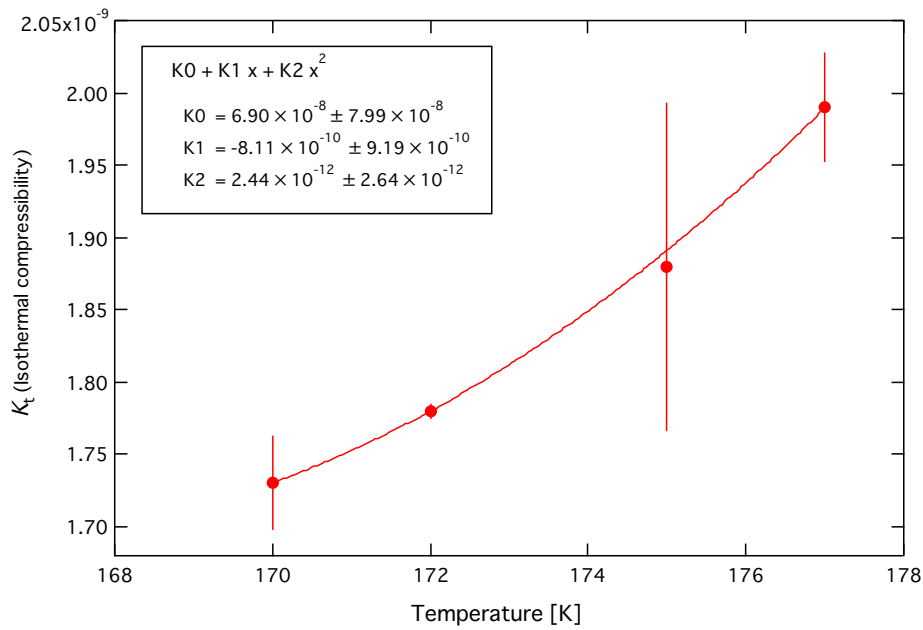


図 5.2 1.6 気圧の液体キセノンの温度と等温圧縮率の関係.

液体キセノンの屈折率については、これまでに 1.6 気圧で測定された精度の良い値が報告されていないため、1 気圧前後の液体キセノンで求められた値から、分子あたりの分極率は変わらないと仮定して密度でスケールして推定した。

一様かつ等方で密な物質に電場が加えられたときの分極 \vec{P} は、分子の分極率は物質の密度によって変化しないとすると次のように表される。

$$\vec{P} = \frac{N\alpha}{(1 - N\alpha/3\epsilon_0)} \vec{E}_{ave} \quad (5.3)$$

ここにおいて、 N は物質の分子の数密度、 α は分子の分極率、 ϵ_0 は真空の誘電率、 \vec{E}_{ave} は物質中の平均の電場である。一方、物質の屈折率 n と物質の比誘電率 ϵ_r との間には、 $n^2 = \epsilon_r$

の関係があり、 $\vec{P} = \epsilon_0(\epsilon_r - 1)\vec{E}_{ave}$ であることから、

$$n^2 = 1 + \frac{N\alpha/\epsilon_0}{(1 - N\alpha/3\epsilon_0)} \quad \text{または、} \quad n = \sqrt{1 + \frac{N\alpha/\epsilon_0}{(1 - N\alpha/3\epsilon_0)}} \quad (5.4)$$

となる。この式を $N\alpha$ について解くと、以下の Lorentz-Lorenz の式が得られる。

$$N\alpha = 3\epsilon_0 \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right) \quad (5.5)$$

したがって、分子の数密度が N_0 である時の屈折率を n_0 とすると、密度に依らない分子の分極率 α が、

$$\alpha = \frac{3\epsilon_0}{N_0} \left(\frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right) \quad (5.6)$$

と表せることから、分子の数密度が一般の N である時の屈折率 n は、この α を (5.4)式に代入することによって、

$$n = \sqrt{1 + \frac{3 \frac{N}{N_0} \left(\frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right)}{1 - \frac{N}{N_0} \left(\frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right)}} \quad (5.7)$$

と表すことが出来る。 N/N_0 は質量密度の比とも一致する量で、これを x とおいて整理すると、以下の式に変形される。

$$n = \sqrt{\frac{(n_0^2 + 2) + 2x(n_0^2 - 1)}{(n_0^2 + 2) - x(n_0^2 - 1)}} \quad (5.8)$$

さらに、この式を x について微分すれば、 $n = n_0$ において、

$$\left. \frac{dn}{dx} \right|_{n=n_0, x=1} = \frac{1}{6n_0} (n_0^2 + 2)(n_0^2 - 1) \quad (5.9)$$

が得られる。したがって、この式を用いれば、密度比 x が 1 に近い場合には、屈折率 n の微小な変化を容易に求めることが出来る。実際に、この式が、圧力が異なる 0.090 MPa と 0.12 MPa の両条件下で測定した液体キセノンの屈折率の差が、(5.9)式によって誤差の範囲で良く説明することが実測によって確かめられている[7]。

以上の議論に基づき、XMASS実験の条件である1.6気圧および174Kの液体キセノンの密度を最初に求めた。様々な温度での液体キセノンの圧力と密度の測定結果[41]から、温度が170, 172, 175, 177Kのそれぞれに対する圧力と密度の関係を図5.3に示す。図5.3が示すように、圧力の低圧側では密度と圧力との間に良い線形関係が見られる。そこで、低圧側から3点を用いて密度 ρ と圧力 P の直線関係 $\rho = a + bP$ (a と b は定数)を求め(図5.3), 1.6気圧と1気圧における密度を求めた。1.6気圧および1気圧での、前述の各温度における密度を図5.4に示す。

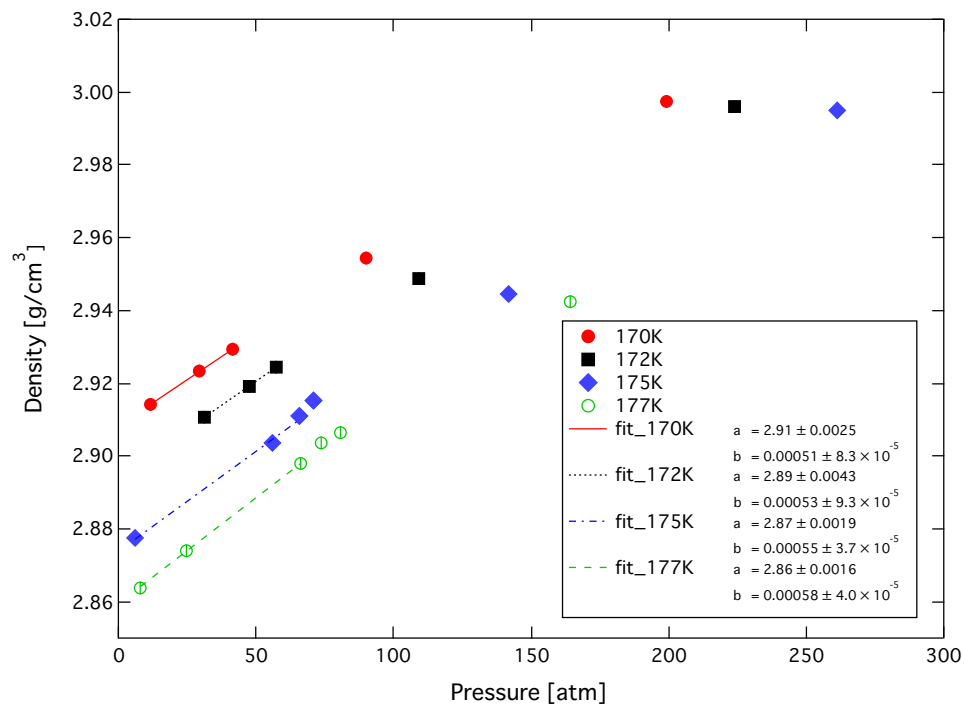


図 5.3. 液体キセノンの一定温度における圧力と密度の関係。

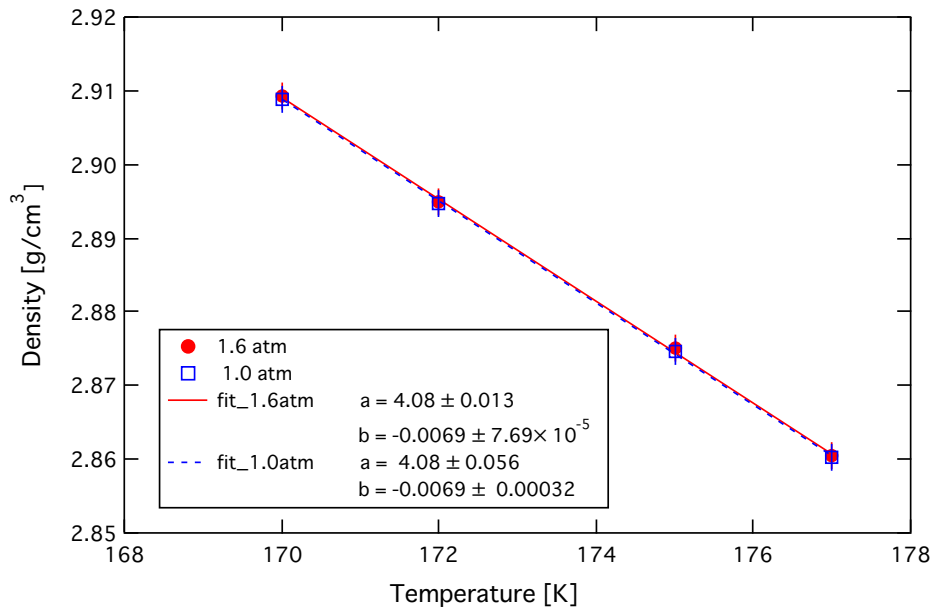


図 5.4. 1 気圧及び 1.6 気圧における液体キセノンの温度に対する密度の関係.

図5.4が示すように、密度と温度との間には良い線形関係が見られる。そこで、密度 ρ と温度 T の直線関係 $\rho = a + b T$ (a と b は定数) を求めた (図5.4)。これにより、1.6気圧と1気圧における密度が求まり、1.6気圧および174 Kでの密度は2.88 g/cm³、1気圧および165 Kでの密度は2.94 g/cm³と求まった。両者の差は僅か2%程度であることから、(5.9)式を用いて図2.1に示した1気圧、165 Kでの屈折率から、1.6気圧、174 Kでの屈折率を求めることができる。本研究で得られた発光の中心波長の174.8 nmでは、1気圧、165 Kでの屈折率が1.645であることから、1.6気圧、174Kにおける屈折率は1.617と求まった。

以上の結果をまとめると、レイリー散乱長を計算するために必要な各量と誤差は表 5.1 のようになる。ここにおいて、波長の誤差は、系統誤差と統計誤差の二乗和の平方根を誤差とした。その他の数値の誤差は、測定誤差および誤差を伝搬させて評価した値を用いた。

表 5.1 液体キセノンの発光の中心波長でのレイリー散乱長の計算に用いたパラメータ.

パラメータ	値	計算条件
発光中心波長	174.8 ± 0.14 nm	1.09 気圧, 168 K 1.15 気圧, 169 K
温度	174 ± 1.2 K	1.6 気圧
等温圧縮率	(1.85 ± 0.05) × 10 ⁻⁹ m ² /N	1.6 気圧, 174 ± 1.2 K
屈折率	1.617 ± 0.007	1.6 気圧, 174 ± 1.2 K

表 5.1 の数値を(5.1)式に代入し, 174.8 nm の波長の光に対するレイリー散乱長を求めた結果, 1.6 気圧, 174 K で,

$$L = 41.3 \pm 1.7 \text{ cm} \quad (5.10)$$

と求まった。ここにおいて, 結果の誤差は4.1%であるが, 表5.1の各パラメータの誤差を伝搬させて求めた。誤差の内訳は, 波長の誤差から0.93%, 屈折率の誤差から3.8%, 温度の誤差から1.3%, 等温圧縮率の誤差から0.13%であった。この誤差は, 当初の目標を上回るレベルに抑えることができた。

液体キセノンの発光スペクトルのピークには有限の幅がある。そこで, そのピーク内の波長の違いでレイリー散乱長がどの程度変化するかについてさらに検討した。

波長 λ のシンチレーション光が液体キセノン中を距離 x 進むとき, 散乱を受けない光の強度 $I(\lambda, x) d\lambda$ は, 初期強度を $I_0(\lambda) d\lambda$, 散乱長を $L(\lambda)$ として以下の式で表される。

$$I(\lambda, x) d\lambda = I_0(\lambda) d\lambda \exp(-x / L(\lambda)) \quad (5.11)$$

ここで, $I_0(\lambda)$ は液体キセノンの発光スペクトルの強度分布 $f(\lambda)$ を用い,

$$I_0(\lambda) = f(\lambda) \quad (5.12)$$

と表されるので, 距離 x に対するシンチレーション光の強度は,

$$I(x) = \int f(\lambda) \exp(-x / L(\lambda)) d\lambda \quad (5.13)$$

となる。液体キセノンの発光スペクトルとして、前章で述べた、本研究で求めた中心波長174.8 nm, FWHMの10.3 nmを用い、初期強度を1に規格化して得た透過強度の計算結果を、発光の中心波長での透過強度とともに透過距離の関数として図5.5に示す。ここで、散乱長 $L(\lambda)$ を求める際は、屈折率を通じての波長依存性も考慮した。

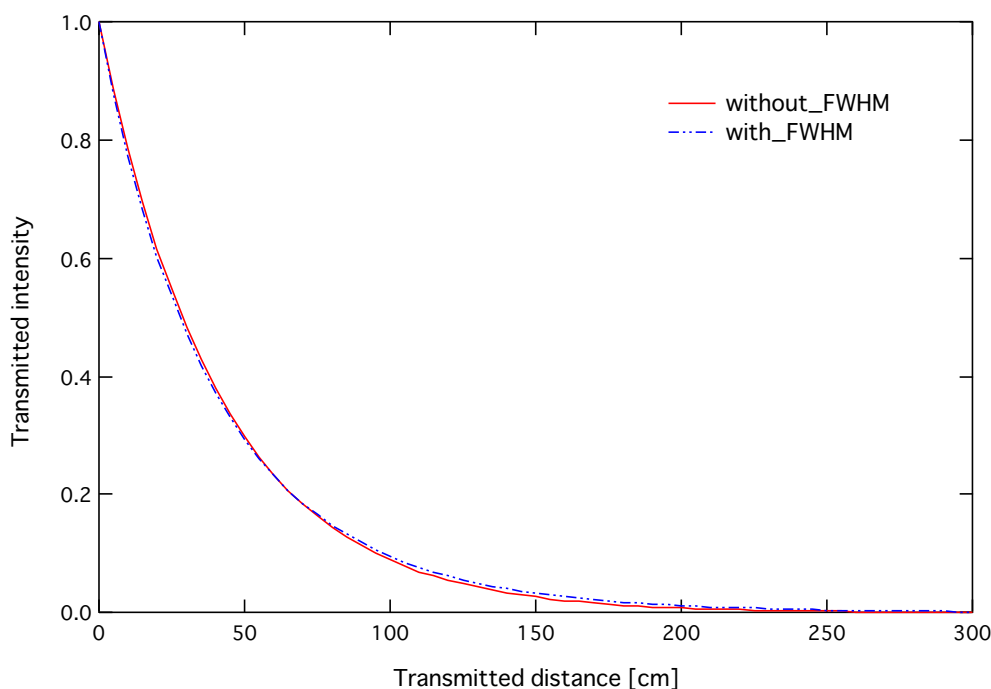


図 5.5 液体キセノンのシンチレーション光の透過距離に対する透過強度.

図5.5において、スペクトルのピークの幅を考慮した場合の透過強度の曲線と中心波長での透過強度の曲線とは、それらの違いは僅かではあるが、距離が60–70cm前後において交差している。これは、ピークの幅を考慮した曲線は指数関数型から外れることを意味するが、ピーク内の波長の短い側の成分が早めに散乱し、波長の長い側の成分が遠距離まで残ると考えられることで理解される。すなわち、光が進むにつれてスペクトルそのものが平均して長波長側にシフトすることを意味する。

液体キセノンを大量に用いるXMASS実験の検出器の場合を考えると、検出器内で光が進む最大距離がおよそ80 cmであるので、これに合わせ、スペクトルのピークの幅を考慮した透

過強度の曲線を0–80 cmの範囲で指数関数を用いてあてはめた。その結果、あてはめた関数から得られた散乱長は中心波長において得られた値と有意な違いはなかった。したがって、次節で述べるXMASS実験で報告されている散乱長52 cmという値は、本研究で得られた発光の中心波長とFWHMを考慮しただけでは説明が出来ない。

なお、本研究で計算された散乱長は、表 2.2 に示した過去のレイリー散乱長の報告と比較すると、文献[13]が報告した、測定条件が約 163 K, 1 気圧での 40 cm が近い。

図 5.6 に、174 K と 1.6 気圧の場合における単一の波長に対するレイリー散乱長を波長の関数としてプロットするとともに、本研究のスペクトル測定実験の run#1 で取得した発光スペクトルを上下に並べて示す。ここにおいて、散乱長の計算では(2.8)式と(5.9)式から屈折率を求めて用いた。

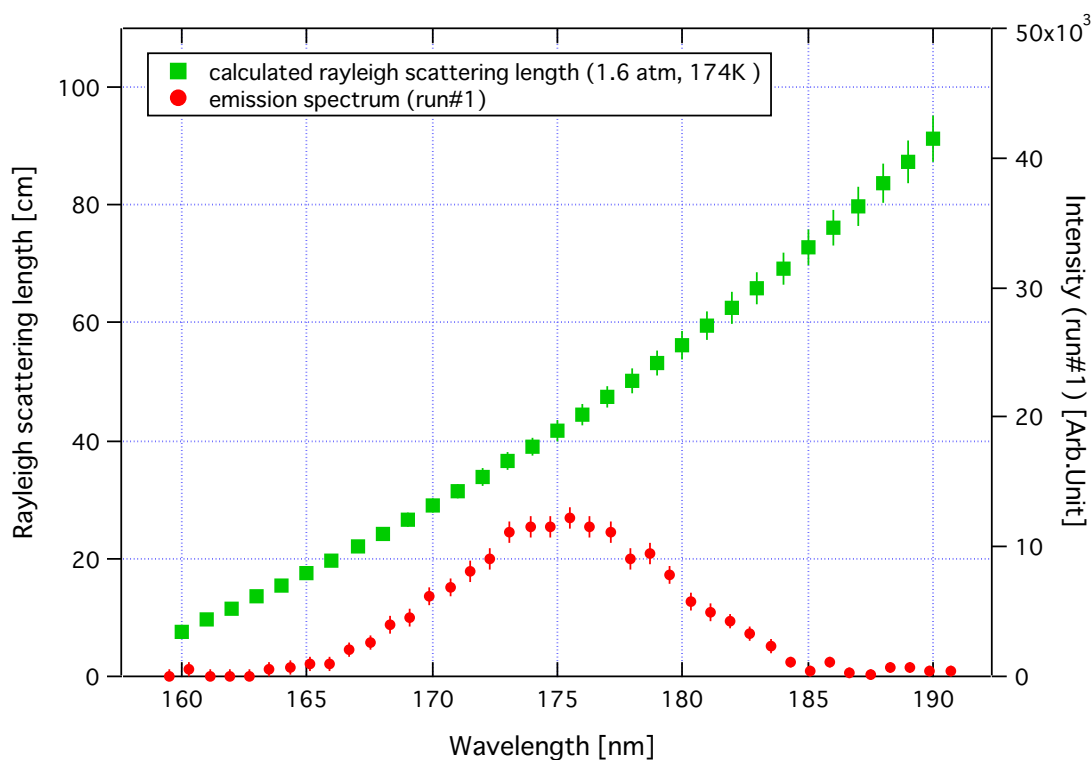


図 5.6. 液体キセノンの波長に対するレイリー散乱長の計算結果.

図 5.6 が示すように、レイリー散乱長は波長によって大きく変化し、液体キセノンの発光スペクトルのピークの中でさえも、およそ 20 cm から 70 cm まで変化すると考えられる。

これまで発光中心波長として引用されていた 174 nm と 178 nm に対するレイリー散乱長を求めると、それぞれ 39.1 cm と 50.3 cm となり、その違いは約 29 % もあったが、本研究により発光波長を中心波長と FWHM をともに高い精度で決定することで、同じ計算手法でも、散乱長の推定値のあいまいさを 4.1 % まで大幅に低減することが出来た。

また、178 nm を発光の中心波長とした場合に算出されるレイリー散乱長の 50.3 cm は、表 2.2 の 4.5 気圧、199K で報告された 50 cm[14] と近い。この一致は偶然かもしれないが、なんらかの事情により Jortner 等が実際に 178 nm を中心波長として実測し、また上記の温度と圧力で散乱長も測られたとすればつじつまが合う。しかしながら、散乱長 50cm を報告している文献の実験で使用した圧力である 4.5 気圧に比較的近い、4.1 気圧と 196K という条件で散乱長を 29 ± 2 cm と報告している文献[11]もあるので、これまでの報告を無矛盾に理解することは困難であり、様々な校正を施した新しい実験が今後に行われることが望ましい。

5.3 XMASS 実験への寄与

算出したレイリー散乱長の結果の XMASS 実験への寄与について考察する。XMASS 実験では、入射粒子により生じたキセノンの発光を、取り巻いている周囲の多数の PMT で受光して、検出される光の強度分布を用いて幾何学的な考察を元に発光量と発光点とを算出し、入射粒子が付与したエネルギーを求める[42]。具体的には、検出器内の各構成要素とそこで生ずる様々な素過程を取り入れた計算シミュレーションを用いて検出器内の 306 箇所の格子点でイベントを発生させ、予想される光の強度分布と実際の信号を比べて解析を行なっている。

この計算シミュレーションの正確さを増すことが、解析の精度を上げる鍵である。そこで、基準となる放射線源の信号と計算シミュレーションの結果を比較することによって、シミュレーションに用いられている物理パラメータを最適化することが行われている。物理パラメータとしては、液体キセノン中での光子の散乱長、吸収長、検出器内の銅やアルミニウム、PMT の光電面等での VUV 領域での反射率などがある。そして、放射線源を使った校正データを最も良く再現する値が選ばれたが、シミュレーションの高精度化に伴い、その値は時とともに徐々に変化している。また、物理パラメータはそれぞれ独立に決めることは難しく、依存関係にあるのが普通である。

2014 年の XMASS 実験での報告[43]では、 ^{57}Co 線源からの 122 keV の γ 線のデータを多数取得して物理パラメータの調整が行われている。そして、液体キセノンの散乱長は 52 cm、吸

収長は600 cm, 検出器内のアルミニウムと銅のVUV領域での反射率はそれぞれ, 0.6と0.25とされた。図5.7に, 各パラメータを最適化した後における各PMTの光電子数を示す。図が示すように, Z=40cm前後で系統的な不一致が残っている。また, 調整後の散乱長は, 本研究で算出した値よりも20%程度長い。

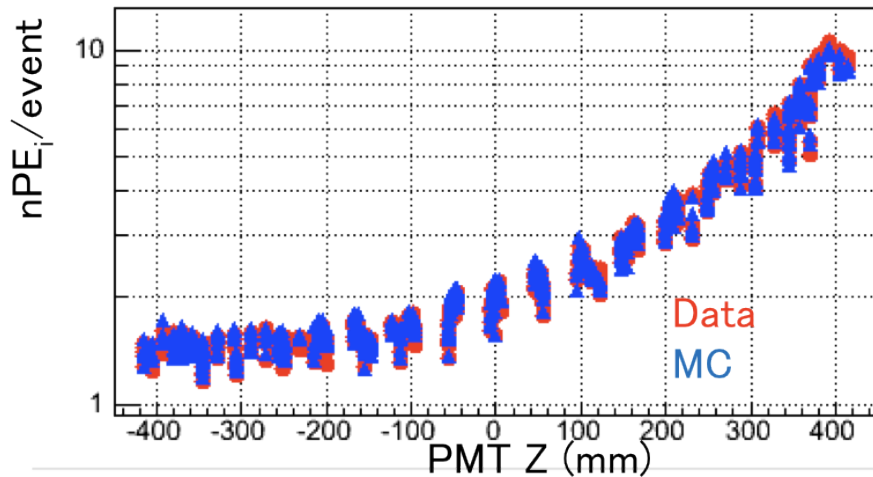


図 5.7 XMASS 実験の検出器シミュレーションでパラメータを最適化した後, Z=-20cm に ^{57}Co 線源があるときの各 PMT の光電子数のシミュレーション結果と実測値[43].

一方, XMASS 実験で 2012 年に報告された同様の比較[44]を図 5.8 に示す。図の横軸が ^{57}Co 線源の検出器内の高さ z , 縦軸が光電子数のピークの位置で, ^{57}Co 線源の 122 keV の γ 線に対応する光電子数のピークの実測値とシミュレーション結果を, 散乱長を 60 cm と 30 cm とに変え, それ以外の物理パラメータは固定して示している。図 5.8 のグラフの概形は簡単には説明できないが, 線源付近で生ずる発光が検出器の中心から光電面に近付くにつれて, その近傍の PMT での光電子数の増加が全体の光電子数の増加につながっているとみられる。図 5.8 が示すように, 散乱長は 30cm の場合におおよそ実測に合う結果が得られたが, 図 5.9 に示すように, 各 PMT で取得した光電子数は散乱長を 30 cm にしたのでは実測とシミュレーションとが有意にずれていた。

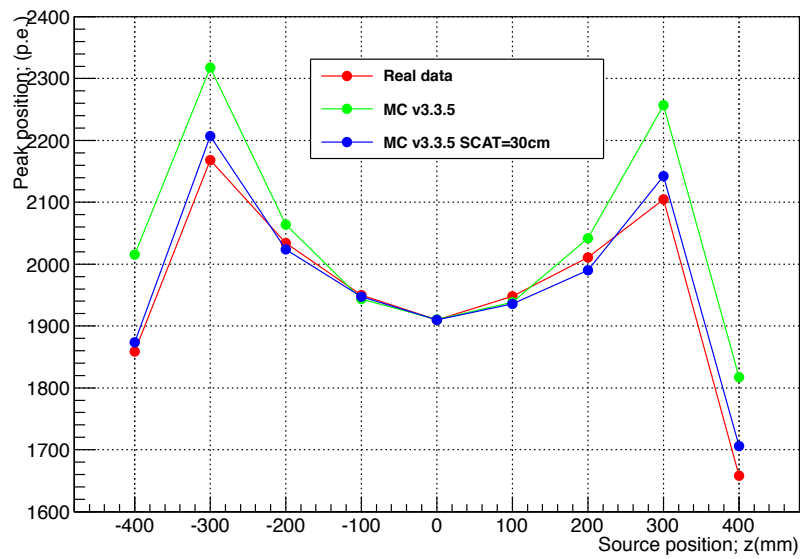


図 5.8 シミュレーションで散乱長を 60cm または 30cm にしたときの、 ^{57}Co 線源の検出器内の各高さに対する PMT の全光電子数のシミュレーション結果と実測値（赤：実測値，緑：散乱長 60cm，青：散乱長 30cm） [44].

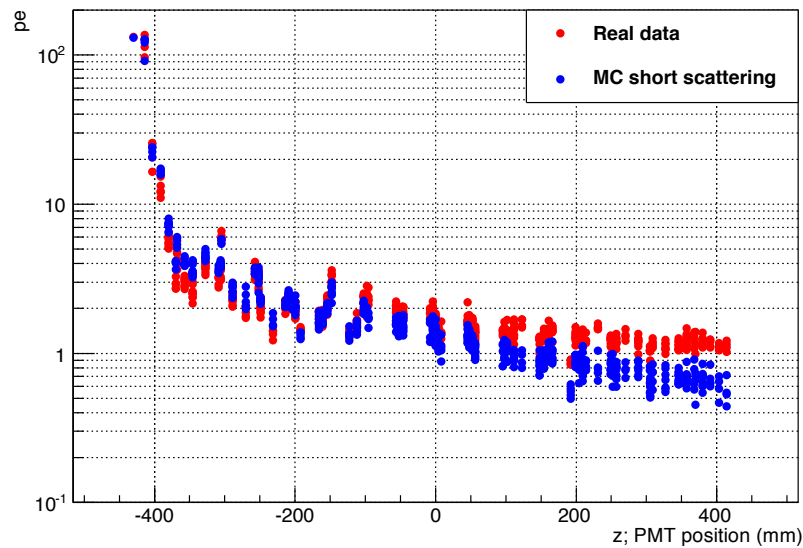


図 5.9 散乱長を 30cm としたときの、 ^{57}Co 線源が検出器の高さ -40cm の位置にあるときの各 PMT の光電子数のモンテカルロシミュレーションの結果と実測[44].

以上のように、XMASS 実験では検出器応答を正確に理解するための努力が続けられてきているが、前述したように 2014 年には散乱長は 52 cm が考えられているなど、散乱長の推定は他の物理パラメータとの兼ね合いで調べられていて難しく、最終的な解決は道半ばであ

る。このような現状において、本研究で他の不確定な物理パラメータに依らずに独立した測定によって散乱長を高い精度で見積もることが出来たことは意義深い。

その他、XMASS 実験では現在、検出器のシミュレーションの様々な部分において、簡単のために液体キセノンの発光波長として発光スペクトルのピークの中心波長のみを用いている。このことについても、本研究で求めたピークの幅の FWHM をシミュレーションに取り込むことによって、検出器各部の光の吸収、散乱、反射等をより高い精度で見積もることが出来、検出器応答の理解を大きく前進させることができると期待される。

6章 結論

本研究では、優れたシンチレータとして最先端の宇宙素粒子物理学実験で用いられている液体キセノンについて、これまで定かでなかった VUV 領域における発光波長の精密測定を行なってそのスペクトルを求め、スペクトル全体の形状と中心波長および FWHM をこれまでにない高い精度で明らかにした。

測定は、液体キセノンを用いた一般の校正用放射線源の γ 線で励起し、生じたシンチレーションの微弱光をさらに分光器で分光して高い SN 比で光子計数を行ない、波長について走査して求めた。光子計数を高い SN 比で実現するために、光子計数用の PMT を用いてシンチレーションが発生した時間に限定して光子計数を行なう、光子同時計数法と呼ばれる手法を用いた。これにより、光子検出用 PMT 自身に由来する熱電子起源の計数は大幅に低減することが出来た。

液体キセノンは、高純度のキセノンを低温かつ酸素や水分などの不純物のない環境で扱う必要があるため、条件を満たす真空槽と冷却系を備えた専用の光学系を構築し、素粒子実験の分野で用いられ確立されている信号処理およびデータ取得回路系を適用した。また、光子計数は、スケーラーだけでなく電荷積分型 ADC も同時に併用して、イベント毎に信号電荷量を測定することで信号強度を正確に評価した。

さらに、可能な限り系統誤差を排除し正確な発光スペクトルを求めるため、用いた瀬谷波岡型分光器の測定波長の系統誤差を、既知の水銀の輝線スペクトルを用いた校正実験で正確に評価するとともに、その系統誤差の原因についても分光器の原理に基づいて注意深く考察した。そして、液体キセノンを用いた測定の条件下での系統誤差を推定して、液体キセノンの発光スペクトルを適切に補正し、正確な誤差を付して最も精度の高い中心波長と FWHM を得た。最終的に得られた中心波長と FWHM はそれぞれ、 174.8 ± 0.1 (stat.) ± 0.1 (syst.) nm, および 10.3 ± 0.2 (stat.) ± 0.2 (syst.) nm である。これらの結果は、過去に最も多く引用されてきた値である中心波長の 178 nm, FWHM の 14.3 nm よりも、中心波長は約 3 nm 短く、FWHM は約 4 nm 狭い。

本研究ではさらに、求めた高精度の発光波長が有用である典型的な例として、大型の液体キセノン検出器で重要なパラメータとなるレイリー散乱長の値を議論した。特に、現在進行中の世界最大級の液体キセノン検出器を用いた暗黒物質探索実験 XMASS の温度と圧力の条

件のもとで、液体キセノンの屈折率と等温圧縮率とともに具体的にレイリー散乱長の値を計算し、中心波長で、 41.3 ± 1.7 cmという結果を得た。また、レイリー散乱長の値は、液体キセノンの発光スペクトルのピーク内における僅かな波長の違いによっても無視出来ないほど大きく変化することも示した。これらの結果は計算値としては現在までで最も精度が高く、実用上十分な精度に初めて達している。したがって、得られた波長の結果とともに、計算されたレイリー散乱長の値は、現在稼働中のものを含め今後の様々な液体キセノン検出器において、検出器の応答を正確に理解し設計する上で必要不可欠な情報になると思われる。

なお、本研究で用いたシンチレーション光の波長の測定手法は、原理的に標準的な様々な技術を総合して実現したもので幅広く応用が可能であるため、シンチレータの相や温度、励起用放射線源の種類など励起手法にも依らず、液体キセノン以外の希ガスシンチレータ全般はもとより、あらゆるシンチレータの発光波長の測定に適用することができる。

参考文献

- [1] J.B. Albert et al., Phys. Rev. C 89 (2014) 015502.
- [2] A.S. Barabash et al., Phys. Lett. B 223 (1989) 273.
- [3] A. Baldini et al., IEEE Trans. Diele. and Elec. Insul. 13 (2006) 547.
- [4] W.M. Haynes et al., “CRC Handbook of Chemistry and Physics”, 95th ed., CRC Press (2014).
- [5] E. Aprile and T. Doke, Rev. Mod. Phys. 82 (2010) 2053.
- [6] M.J. Berger et al., XCOM: Photon Cross Sections Database,
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/XCOM.html>.
- [7] 富田賢典, 「液体キセノンの屈折率の密度依存性の研究」, 2005年度 横浜国立大学修士論文.
- [8] 例えば, C. Grupen and B. Shwartz, “Particle Detectors”, 2nd ed., Cambridge University Press (2008) 127.
- [9] G.M. Seidel et al., Nucl. Instr. and Meth. A 489 (2002) 189.
- [10] J. Jortner et al., J. Chem. Phys. 42 (1965) 4250.
- [11] N. Ishida et al., Nucl. Instr. and Meth. A 384 (1997) 380.
- [12] V.N. Solovov et al., Nucl. Instr. and Meth A 516 (2004) 462.
- [13] A. Braem et al., Nucl. Instr. and Meth. A 320 (1992) 228.
- [14] V.Y. Chepel et al., Nucl. Instr. and Meth. A 349 (1994) 500.
- [15] E. Aprile et al., “Noble Gas Detectors”, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA (2006) 31.
- [16] MEG Research Proposal to Paul Scherrer Institut,
https://meg.web.psi.ch/docs/prop_psi/proposal.pdf; Research Proposal to INFN,
https://meg.web.psi.ch/docs/prop_infn/nproposal.pdf.
- [17] A. Hitachi and T. Takahashi, Phys. Rev. B 27 (1983) 5279.
- [18] T. Doke et al., Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) 1538.
- [19] S. Kubota et al., Phys. Rev. B 20 (1979) 3486.
- [20] 神谷武志, テレビジョン 第25巻 第6号, “光物性入門(2) 光の放射” (1971) 446.
- [21] J.B. Birks, “The Theory and Practice of Scintillation Counting”, Pergamon Press Ltd. (1964).
- [22] 櫛田孝司, “光物性物理学”, 朝倉書店 (2007).

- [23] R.S. Mulliken, J. Chem. Phys., 52 (1970) 5170.
- [24] 174 nmについては, 例えば文献[8], 178 nmについては文献[3].
- [25] K. Saito et al., JSAP The 68th Autumn Meeting (2007) 6p-ZC-14.
- [26] K. Abe et al., Phys. Lett. B 719 (2013) 78.
- [27] K. Abe et al., Nucl. Instr. and Meth. A 716 (2013) 78.
- [28] L. Baudis et al., Phys. Rev. D 87 (2013) 115015.
- [29] R. Bernabei et al. (DAMA Collaboration, LIBRA Collaboration), Eur. Phys. J. C 73 (2013) 2648.
- [30] J. Adam et al., Phys. Rev. Lett. 110 (2013) 201801.
- [31] A. Miceli et al., J. Phys.: Conference Series **312** (2011) 062006.
- [32] ランダウ・リフシッツ, “電磁気学2” 東京図書 (1987).
- [33] H. Koch et al., J. Chem. Phys. 111 (1999) 10108.
- [34] L.M. Barkov et al., Nucl. Instr. and Meth. A 379 (1996) 482.
- [35] [9]中の引用文献[34].
- [36] J.E. McMillan and C.J. Martoff, Measurement Science and Technology 17 (2006) 2362.
- [37] W. Becker, "Advanced Time-Correlated Single Photon Counting Techniques", Springer-Verlag (2005).
- [38] S. Tokar et al., ATL-TILECAL-99-005, “Single Photoelectron Spectra Analysis for the Metal Dynode Photomultiplier” (1999).
- [39] T. Harada and T. Kita, Applied Optics 19 (1980) 3987.
- [40] K.S. Seshadri et al., Spectrochimica Acta 19 (1963) 1013.
- [41] F. Theeuwes and R.J. Bearman, J. Chem. Thermodynamics 2 (1970) 501.
- [42] K. Ueshima, PhD thesis, University of Tokyo (2010).
- [43] B. Yang et al., JPS Autumn Meeting (2014).
- [44] 平野重利, 「XMASS実験800kg検出器の較正源を用いたシミュレーションの性能評価」, 2012年度 東京大学修士論文.