

2024 年度 修士論文

J-PARC KOTO II 実験のための  
UV 硬化アクリル樹脂を用いたシンチレータの開発

大阪大学大学院理学研究科  
物理学専攻

博士前期課程 2 年  
学籍番号 24B23019

片山 舞

2025 年 2 月 27 日

## 概要

J-PARC KOTO II 実験は、中性 K 中間子の稀な崩壊  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊を探索する次世代の実験である。この崩壊の素粒子物理学の標準模型での崩壊分岐比は、 $3 \times 10^{-11}$  と小さい。また、理論的不確かさも小さいため、新物理の手がかりを見つけやすい。KOTO II 実験では 2030 年代に  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の観測を目指す。

KOTO II 実験の信号事象は、 $\pi^0$  の崩壊による 2 光子のみである。そのため、検出器は光子を検出する電磁カロリメータと、他に検出できる粒子がないことを保証する veto 検出器からなる。検出器の大きさは全長 20 m、内径 3 m で、形は円筒状である。

本研究では、近年開発が進んできている UV 硬化アクリル樹脂を用いたシンチレータの発光機構を研究した。また、KOTO II 実験の多くの検出器でプラスチックシンチレータを用いるため、シンチレータの性能を向上するためにも本研究を行なった。今回用いた UV 硬化アクリル樹脂は、紫外線を照射すると固まるアクリレート系のモノマーである。作成したシンチレータと市販品の光量を比較して、UV 硬化アクリル樹脂のシンチレータの発光機構を調べた。調べた項目は、適切な紫外線照射時間や蛍光剤の濃度と光量の関係、溶質に用いた蛍光剤と波長変換剤の混合比が光量に与える影響などである。なお、本研究で得られた最大獲得光量は、シンチレータ中での 1 MeV のエネルギー損失あたり 840 光電子であった。これはサンゴバン社製のシンチレータ BC404 との相対比較で 0.49 倍である。

# 目次

第 1 章	序論	1
1.1	J-PARC KOTO II 実験の物理	1
1.2	J-PARC KOTO II 実験の概要	2
1.3	J-PARC KOTO II 実験のビームラインと検出器	3
1.3.1	ビームラインの設計	3
1.3.2	検出器全体のデザイン	4
1.3.3	各検出器におけるシンチレータの役割	5
1.4	プラスチックシンチレータ	7
1.4.1	従来のシンチレータ	7
1.4.2	近年開発されているシンチレータ	7
1.5	本研究の目的	7
第 2 章	プラスチックシンチレータの原理	9
2.1	従来シンチレータの発光の原理	9
2.2	蛍光剤の種類	11
2.3	波長変換剤の種類	11
2.4	アクリルシンチレータの発光原理と期待されること	12
第 3 章	シンチレータの材料と作成	14
3.1	本研究に用いる基剤とシンチレータ剤	14
3.1.1	アクリレートモノマー	14
3.1.2	蛍光剤と波長変換剤	15
3.1.3	光重合開始剤	16
3.2	作成手法	18
3.2.1	作成手順	18
3.2.2	作成にあたって研究した条件	19
3.2.3	混合時の温度と混合時間	20
第 4 章	放射線源を用いた光量測定	21
4.1	測定原理	21
4.1.1	低エネルギー単色ガンマ線による光電吸収ピーク	21
4.1.2	$^{241}\text{Am}$ からの低エネルギー単色ガンマ線の利用	22
4.1.3	測定される光電吸収ピークと光量の関係	23
4.2	実験のセットアップ	25

4.3	データ取得方法	26
4.4	市販シンチレータによる測定手法の検証	27
4.4.1	データの解析方法	27
4.4.2	光電吸収ピークの検証	28
4.4.3	市販シンチレータの絶対光量	29
第5章	発光特性の研究	33
5.1	再現性の評価	33
5.1.1	測定方法の再現性	33
5.1.2	作成の再現性	34
5.2	作成からの日数と光量の関係	37
5.3	紫外光照射時間の光量への影響	37
5.4	光重合開始剤が発光機構に与える影響	38
5.5	窒素置換と真空脱気が光量へ与える影響	42
5.6	蛍光剤の濃度依存性	45
5.7	蛍光剤と波長変換剤の混合割合	47
5.8	シンチレータの光量比較	48
5.8.1	Pilot-U の光量の検証	48
5.8.2	BC404 の光量	49
5.8.3	本章の測定で用いたシンチレータの光量比較	49
5.9	蛍光の減衰時間	51
第6章	本研究に用いた基剤の蛍光・励起スペクトル	55
6.1	測定原理	55
6.2	測定方法	56
6.3	測定結果	57
6.4	蛍光・励起スペクトル測定の結果の考察	60
第7章	考察	61
7.1	光重合開始剤による光量の低下	61
7.2	EBECRYL-150 の基剤としての振る舞い	62
7.3	今後の展望	62
第8章	結論	64
付録		65
A	窒素ガス純度 95 パーセントにおける Integrated ADC 値分布	65
謝辞		66
引用・参考文献		68

# 目次

1.1	標準理論における $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$ 崩壊のファインマン図	2
1.2	KOTO II 実験の検出手法の概念図	2
1.3	J-PARC の実験施設の概念図	3
1.4	KOTO II 実験のビームライン	4
1.5	KOTO II 実験と KOTO 実験での検出器に入る $K_L$ の運動量	4
1.6	KOTO II 実験検出器の概念設計	5
1.7	KOTO II 実験における各検出器の概念図	5
1.8	KOTO II 実験のカロリメータの平面図	6
2.1	PVT と PS の構造式	9
2.2	有機シンチレータにおける $\pi$ 電子のエネルギー準位	10
2.3	DPO の構造式	11
2.4	butyl-PBD の構造式	11
2.5	POPOP の構造式	12
2.6	DMPOPOP の構造式	12
2.7	bis-MSB の構造式	12
2.8	PMMA の構造式	13
3.1	EBECRYL-150 の構造式	14
3.2	DPO の様子	15
3.3	POPOP の様子	16
3.4	Omnirad TPO-L の構造式	17
3.5	Omnirad TPO-N の構造式	17
3.6	Omnirad 184 の構造式	17
3.7	作成手順のイメージ図	18
3.8	UV 照射している様子	19
3.9	作成したシンチレータ	19
3.10	溶液を作成している時の様子	20
3.11	溶液の温度が 75 度の時の様子	20
4.1	CH の物質と光子の相互作用	22
4.2	MC で作ったエネルギー分布	23
4.3	MC で作ったエネルギー損失に対応した光量の分布	24
4.4	光量のポアソン分布を考慮して作ったエネルギー分布	24

4.5	シンチレータの光量 (p.e.) とエネルギーの関係	25
4.6	<sup>241</sup> Am を用いた実験のセットアップ	26
4.7	<sup>241</sup> Am を用いた実験の DAQ	26
4.8	Pilot-U の波形	27
4.9	Pilot-U のピークに対応した clock の分布	28
4.10	波形の積分範囲	28
4.11	Pilot-U の Integrated ADC 分布	29
4.12	1 光電子の波形	29
4.13	1 光電子の Integrated ADC 分布	30
4.14	1 光電子の Integrated ADC 値	30
4.15	pilot-U の Integrated ADC 値	31
4.16	市販シンチレータ Pilot-U の光量	32
5.1	測定方法の再現性確認	34
5.2	UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの波形のピークに対応した clock の分布	35
5.3	UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの波形	35
5.4	UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの Integrated ADC 分布	36
5.5	シンチレータ作成の再現性	36
5.6	紫外光照射時間と光量の関係	38
5.7	光重合開始剤 Omnirad TPO-L を加えたシンチレータの Integrated ADC 分布	39
5.8	光重合開始剤 Omnirad 184 を加えたシンチレータの Integrated ADC 分布	40
5.9	光重合開始剤 Omnirad TPO-N を加えたシンチレータの Integrated ADC 分布	40
5.10	Omnirad TPO-L のシンチレータの Integrated ADC 分布	41
5.11	Omnirad TPO-L と Omnirad TPO-N を重量パーセント濃度 0.02 で加えたシンチレータと光重合開始剤を加えていないシンチレータの光量比較	41
5.12	真空脱気に用いたセットアップ。	43
5.13	油回転ポンプを用いて真空脱気している様子。	43
5.14	窒素置換と真空脱気と光量の関係	44
5.15	窒素ガスの量と光量の関係	45
5.16	EBECRYL-150 に対する DPO 濃度と光量の関係	46
5.17	基材に対する DPO 濃度と光量の関係	47
5.18	DPO と POPOP の混合割合	48
5.19	BC404 と Pilot-U の Integrated ADC 分布	49
5.20	シンチレータ中の 1 MeV のエネルギー損失あたりの光電子数	51
5.21	BC404 の蛍光減衰時間	52
5.22	DPO20 % の UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの波形	53
5.23	BC404 と DPO20 % の蛍光減衰時間	53
5.24	BC404 の波形と NIM モジュールの clock generator の出力波形の比較	54
6.1	分光蛍光光度計の構成の概念図	56
6.2	バンド幅の概念図	56
6.3	試料のスペクトル測定	57

6.4	EBECRYL-150 の溶液の蛍光・励起スペクトル . . . . .	58
6.5	UV で硬化させた EBECRYL-150 をの蛍光・励起スペクトル . . . . .	58
6.6	市販のアクリル板の蛍光・励起スペクトル . . . . .	58
6.7	励起波長 320 nm の時の EBECRYL-150(液体) の蛍光スペクトル . . . . .	59
6.8	励起波長 320 nm の時の EBECRYL-150(固体) の蛍光スペクトル . . . . .	59
6.9	励起波長 320 nm の時の市販のアクリル板の蛍光スペクトル . . . . .	60
7.1	硬化直後の光重合開始剤を加えたシンチレータの様子 . . . . .	61
7.2	硬化直後の Omnirad TPO-L(重量パーセント濃度 0.02) を加えたシンチレータの様子。 . . . .	62
A.1	セット 1 の測定時の分布 . . . . .	65
A.2	セット 2 の測定時の分布 . . . . .	65

# 表目次

1.1	KOTO と KOTO II 実験の検出器サイズの比較	4
1.2	KOTO と KOTO II 実験の検出器比較	5
1.3	PVT、PS、PMMA の特徴	7
2.1	DPO, butyl-PBD の特徴	11
2.2	主な波長変換剤	12
3.1	光重合開始剤の特徴。	16
4.1	$^{241}\text{Am}$ の主な崩壊	22
5.1	作成からの時間経過における光量の変化	37
5.2	溶液に加えた光重合開始剤の量	38
5.3	シンチレータ中の 59.5 keV のエネルギー損失あたりの光量比較	50
5.4	シンチレータ中の 1 MeV のエネルギー損失あたりの光量比較	50
6.1	アクリレートモノマーと市販のアクリル板の蛍光・励起スペクトル測定に用いた波長	57
6.2	アクリレートモノマーと市販のアクリル板の蛍光・励起スペクトル測定に用いた波長	59

# 第 1 章

## 序論

J-PARC KOTO II 実験は、長寿命中性  $K$  中間子  $K_L$  の崩壊を使う素粒子物理学実験である。KOTO II 実験では、その中でも  $K_L$  が  $\pi^0$  中間子とニュートリノ・反ニュートリノへ崩壊する  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の研究が主眼である。この章では  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の物理、それを旨とする KOTO II 実験の概要、検出器、そして本研究の目的を述べる。

### 1.1 J-PARC KOTO II 実験の物理

J-PARC KOTO II 実験では中性  $K$  中間子の稀な崩壊  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  を観測し、 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の崩壊分岐比を測定することを目指す。この節では  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊と、その物理について説明する。

素粒子物理学における標準模型は、素粒子の構成とその相互作用 (強い力、弱い力、電磁気力) を説明した理論の枠組みである。この理論は、ほとんどの素粒子の実験結果をよく説明する。しかし、標準模型では物質優勢の宇宙<sup>\*1</sup> や暗黒物質<sup>\*2</sup> などは説明できない。これらの問題を解決するためには、標準模型を超える新物理が要る。KOTO II 実験では、新物理の手がかりを  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊から探す。

標準模型における  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊のファインマン図を図 1.1 に示す。 $s$  クォークが  $d$  クォークへ変化し、終状態に  $\pi^0$  中間子とニュートリノ・反ニュートリノがある。この崩壊は弱い相互作用によるフレーバーを変える中性カレント (Flavor-Changing Neutral Current, FCNC) により起きる。 $u, c$  クォークによる寄与が打ち消しあう GIM 機構により、主に  $t$  クォークを介する<sup>\*3</sup>。式 1.1 に弱い相互作用における質量固有状態の世代間の混合を表した CKM 行列を示す。

$$\begin{pmatrix} d' \\ s' \\ b' \end{pmatrix} = V_{CKM} \begin{pmatrix} d \\ s \\ b \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} V_{ud} & V_{us} & V_{ub} \\ V_{cd} & V_{td} & V_{cb} \\ V_{td} & V_{ts} & V_{tb} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} d \\ s \\ b \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

式左の  $d', s', b'$  は、弱い相互作用の固有状態を表し、 $d, s, b$  は質量固有状態を表す。弱い相互作用では、 $b'$  クォークと  $t$  クォークが互いに変わる。 $b'$  に含まれる  $s, d$  の確率振幅に当たる行列要素  $V_{ts}, V_{td}$  の大きさ ( $s \rightarrow t, t \rightarrow d$  の起こりやすさ) がそれぞれ 0.040, 0.009[1] と小さい。 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の確率振幅は  $V_{ts}, V_{td}$  に比例するため、 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の崩壊分岐比は小さい。さらに、図 1.1 に示すようにループの寄与があるため、崩壊分岐比は更に小さい。そのため  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の崩壊分岐比は  $(2.94 \pm 0.15) \times 10^{-11}$  ([2]) と小さい。この崩壊分岐比の相対的な不確かさは 5% と小さい<sup>\*4</sup>。つまり、 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊は標準模型によってよく理解されている崩壊である。

<sup>\*1</sup> 初期宇宙において、粒子・反粒子の数は同じであった。しかし現在の宇宙には反粒子が存在しない (正確には対生成で反粒子は生成されるが、すぐに粒子と対消滅する)。これは粒子と反粒子に作用する相互作用の強さが異なるからである。そのため、現在の宇宙は物質優勢である。

<sup>\*2</sup> 宇宙の 4 分の 1 程度を占めている物質。暗黒物質の存在証明は重力レンズ効果などで示されている。

<sup>\*3</sup>  $K_L$  は  $K^0$  と  $\bar{K}^0$  の混合状態からなり、CP 対称性が破れているので  $t$  クォークのみが効く。

<sup>\*4</sup> CKM 行列の  $V_{ts}, V_{td}$  による不確かさが支配的であり、理論的不確かさは 2% である [3]。

そのため、測定値と理論値に差があれば、それは有意な差となりやすい。測定値が有意に異なれば、標準理論を超える新物理への手がかりとなる。従って  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊は新物理に感度がある。 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊では、質量が数百 TeV の重い新粒子 [4, 5, 6] も探せる。

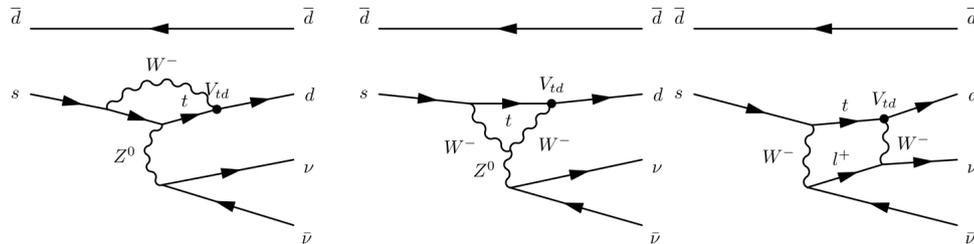


図 1.1 標準理論における  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊のファインマン図 [2]

## 1.2 J-PARC KOTO II 実験の概要

$K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊は未発見であり、実験により探されている。現行の J-PARC KOTO 実験は、2013 年から J-PARC でデータを取り始め、2020 年代に  $10^{-10}$  以下の分岐比まで  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊を探す。KOTO II 実験は現在の KOTO 実験の次世代実験であり、2030 年代に  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の観測を目指す。実験提案書 [2] は 11 カ国、37 研究機関、82 人のメンバーで作成し、2024 年 12 月に J-PARC の Proposal Advisory Committee (PAC) へ提出した。

図 1.2 に KOTO II 実験における  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の検出手法を示す。図中の左から  $K_L$  が入射する。このうち検出器内の崩壊領域で崩壊する  $K_L$  を、 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の信号検出に使う。ニュートリノと反ニュートリノは検出器とほとんど相互作用しないので、KOTO II 実験の  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  崩壊の信号事象は、 $\pi^0$  の崩壊による 2 光子のみとなる。そのため検出器は光子を検出する電磁カロリメータと、他に検出できる粒子がないことを保証する veto 検出器からなる。

これらの検出器を用い、KOTO II 実験では  $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  を検出し、その崩壊分岐比を測定する。ビームラインについては 1.3.1 項で述べる。 $K_L \rightarrow \pi^0 \nu \bar{\nu}$  の崩壊分岐比が標準模型と同じならば、強度 100 kW の陽子ビーム\*5と  $3 \times 10^7$  秒の実験期間に対し、信号事象数の期待値は 35 である。この事象を検出するための各検出器の詳細は 1.3 節で述べる。

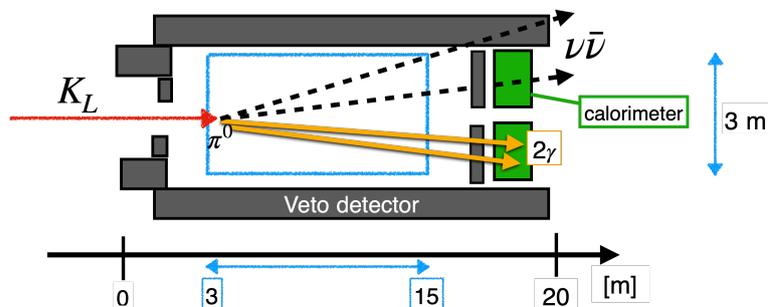


図 1.2 KOTO II 実験の検出手法の概念図。青色の線で囲った領域が崩壊領域である。

\*5 30 GeV の陽子が 1 秒あたり  $2 \times 10^{13}$  個金標的に当たることに相当する。なお、陽子ビームのオンスピルは、4.2 秒のスピルサイクルのうち 2 秒である。

## 1.3 J-PARC KOTO II 実験のビームラインと検出器

この節では KOTO II 実験のビームラインと検出器全体の設計について述べる。

### 1.3.1 ビームラインの設計

J-PARC の実験施設の概略を図 1.3 に示す。図にあるリニアックで負水素イオンが加速される。加速された負水素イオンの塊は、3 GeV のシンクロトロン加速器 (Rapid Cycle Synch., RCS) に入射する際に電子を 2 個失い、陽子ビームとなる。RCS で運動エネルギー 3 GeV に到達した陽子ビームは、直径 500m の陽子シンクロトロン (Main Ring) に送られ、最終的に 30 GeV の陽子ビームとなる。この陽子ビームがハドロン実験施設に取り出される。

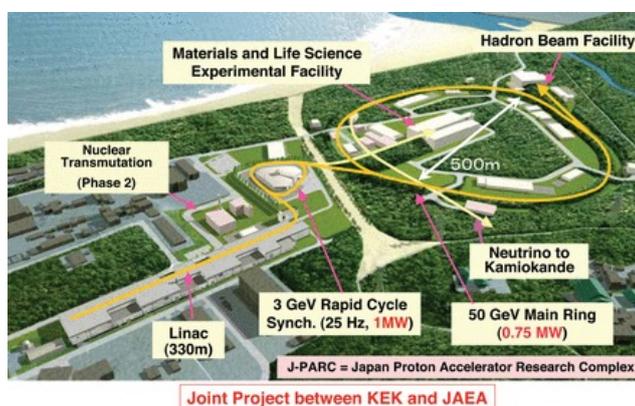


図 1.3 J-PARC の実験施設の概念図 [7]

KOTO II 実験では、ハドロン実験施設に取り出された陽子ビームを使う。図 1.4 に KOTO II 実験のビームラインの概念図を示す。図左から入射した 30 GeV 陽子ビームを金標的 (T2 target) に当て、 $K_L$  を含む 2 次粒子を作る。この 2 次粒子のうち、陽子ビームラインに対して 5 度の方向に来た粒子を使う。

KOTO II 実験では、生成された 2 次粒子のうち、 $K_L$  以外の粒子を減らす。ビーム中の光子を吸収するために厚さ 7 mm の鉛を金標的の 4 m 下流に置く。図に示すように、2 個のコリメータを用いて大きさ 15 cm × 15 cm のビームを作る。この 2 つのコリメータの前後に電磁石を置くことで、荷電粒子を除く。KOTO II 実験のビームラインは金標的から検出器まで 44 m あるため、 $K_s$  などの短寿命粒子は崩壊する。従って、最終的に検出器に入る粒子は主に光子・中性子・ $K_L$  となる。

KOTO II 実験で得られる  $K_L$  の運動量のスペクトルを図 1.5 に示す。図中の赤い線は KOTO 実験の  $K_L$  の運動量を示し、青い線が KOTO II 実験の  $K_L$  の運動量を示す。KOTO 実験のビームの取り出し角度は 16 度であるが、KOTO II 実験ではビームの取り出し角度が 5 度になる。そのため、運動量のピークは 1.4 GeV から 2.9 GeV へ変わる。また、 $K_L$  のフラックスも KOTO 実験と比べて 2.6 倍になる。KOTO II 実験では多くの信号事象得るために、検出器の大きさを KOTO 実験よりも大きくする。詳細は次項で述べる。

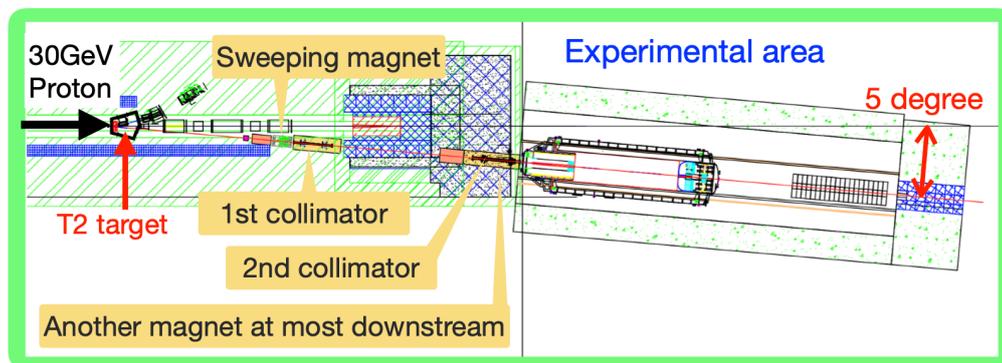


図 1.4 KOTO II 実験のビームラインの概念図 [2]。J-PARC で作られた 30 GeV 陽子ビームを金標的 (T2 target) に当て  $K_L$  ビームを得る。

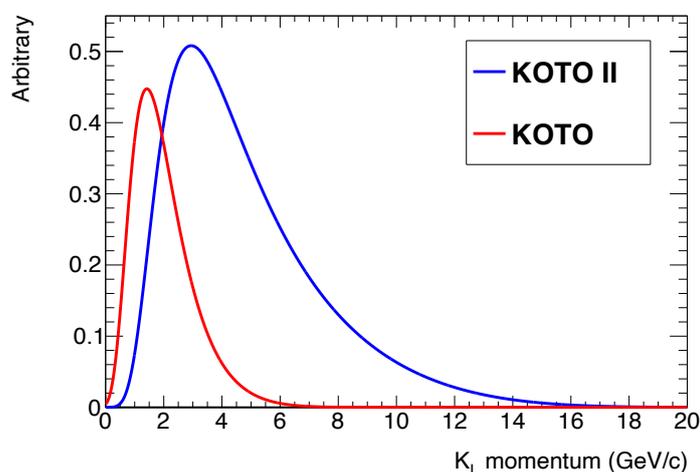


図 1.5 KOTO II 実験と KOTO 実験での検出器に入る  $K_L$  の運動量 [8]。図中の青い線が、KOTO II 実験で得ることのできる  $K_L$  の運動量である。赤い線は、現行の KOTO 実験の  $K_L$  の運動量である。縦軸は、KOTO II 実験と KOTO 実験の相対的なフラックスを反映している。

### 1.3.2 検出器全体のデザイン

KOTO II 実験では検出器が KOTO 実験よりも大きくなる。KOTO 実験との大きな違いを表 1.1 に、KOTO II 実験の検出器の概念設計を図 1.6 に示す。図の左から右方向がビーム方向である。図中の Front Barrel Counter の左表面が金標的から 44 m である。ビーム下流に、信号事象である 2 光子を検出するカロリメータを置き、その 30 cm 手前に荷電粒子検出器を置く。カロリメータの中心には、大きさ 20 cm × 20 cm のビームホールがある。検出器の大半を占めるバレル検出器は、光子検出器である。ビーム方向のバレル長は 20 m である。これら各検出器の詳細を 1.3.3 項で説明する。

表 1.1 KOTO と KOTO II 実験の検出器サイズの比較

検出器	KOTO 実験	KOTO II 実験
ビーム方向のバレル長	6.5 m	20 m
カロリメータの直径	1.9 m	3 m

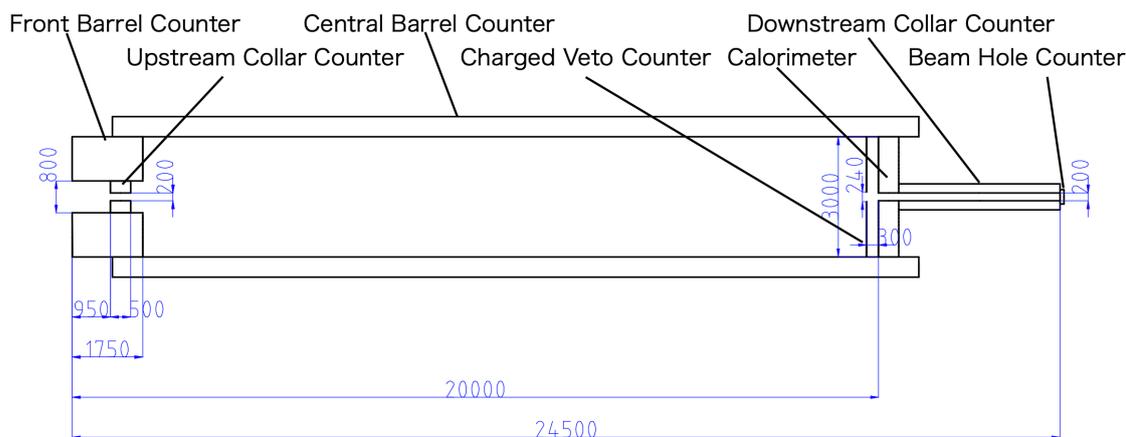


図 1.6 KOTO II 実験検出器の概念設計 [2]

### 1.3.3 各検出器におけるシンチレータの役割

KOTO II 実験の検出器の特徴を表 1.2 に示し、表中にある検出器を色分けした概念図を図 1.7 に示す。KOTO II 実験ではバレル検出器に KOTO 実験と同様に鉛とプラスチックシンチレータの積層型を用いる。鉛の厚みは 1 mm、プラスチックシンチレータの厚みは 5 mm である。鉛とプラスチックシンチレータの各層は、ビーム軸方向に積み重ねる。

表 1.2 KOTO と KOTO II 実験の検出器比較

検出器	KOTO 実験	KOTO II 実験
バレル	鉛とプラスチックシンチレータの積層型	鉛とプラスチックシンチレータの積層型
CV	プラスチックシンチレータ (BC404)	プラスチックシンチレータ
カロリメータ	CsI 結晶	CsI 結晶

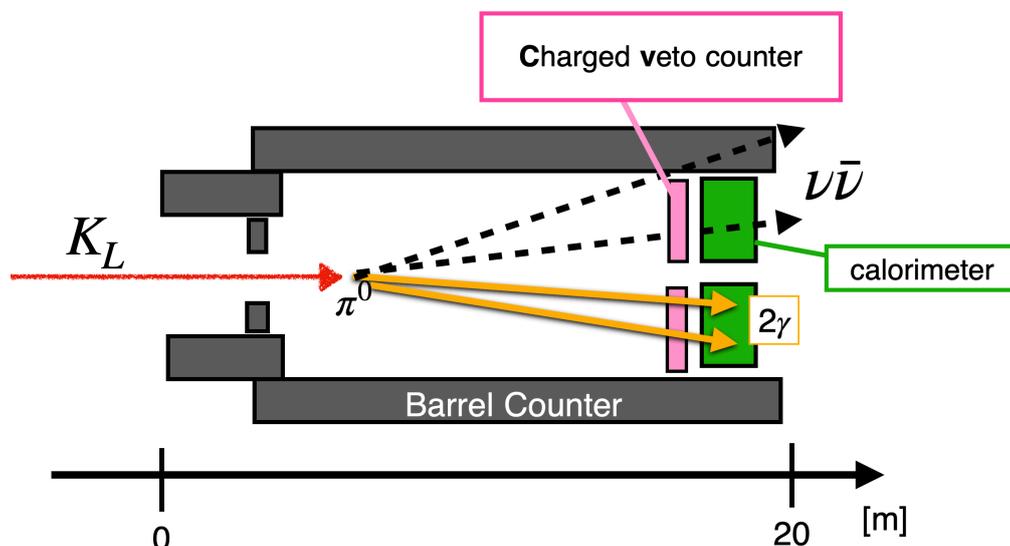


図 1.7 KOTO II 実験における各検出器の概念図

荷電粒子検出器 (Charged veto counter, CV) は KOTO 実験ではプラスチックシンチレータ (サンゴバン社製 BC404) だが、KOTO II 実験では BC404 よりも時間分解能が良いシンチレータを要求する。これは、KOTO 実験では CV の時間分解能が十分ではなく信号事象候補の損失<sup>\*6</sup>が起きているからである。1.4.2 項で説明する量子ドットシンチレータは光の発光減衰が高速なので、候補の1つである。

カロリメータは、表 1.1 に示したように、直径が 1.5 倍になる。カロリメータの概念を図 1.8 に示す。カロリメータの半径は 1.5 m まであり、ドーブのない CsI 結晶で構成される。CsI 結晶の外側には、veto 検出器を置く。この検出器はバレル検出器と同様の鉛とプラスチックシンチレータの積層型である。

検出器のサイズが大きくなるに伴い、バレル検出器で用いるプラスチックシンチレータの量は増える。カロリメータも、全てドーブのない CsI 結晶にすると費用がかさむ。そのため、保有する CsI 結晶を超える領域 (図 1.8 の青色の部分) では鉛とプラスチックシンチレータの積層型を検討している。

性能向上とコスト削減の観点から、プラスチックシンチレータを開発したい。

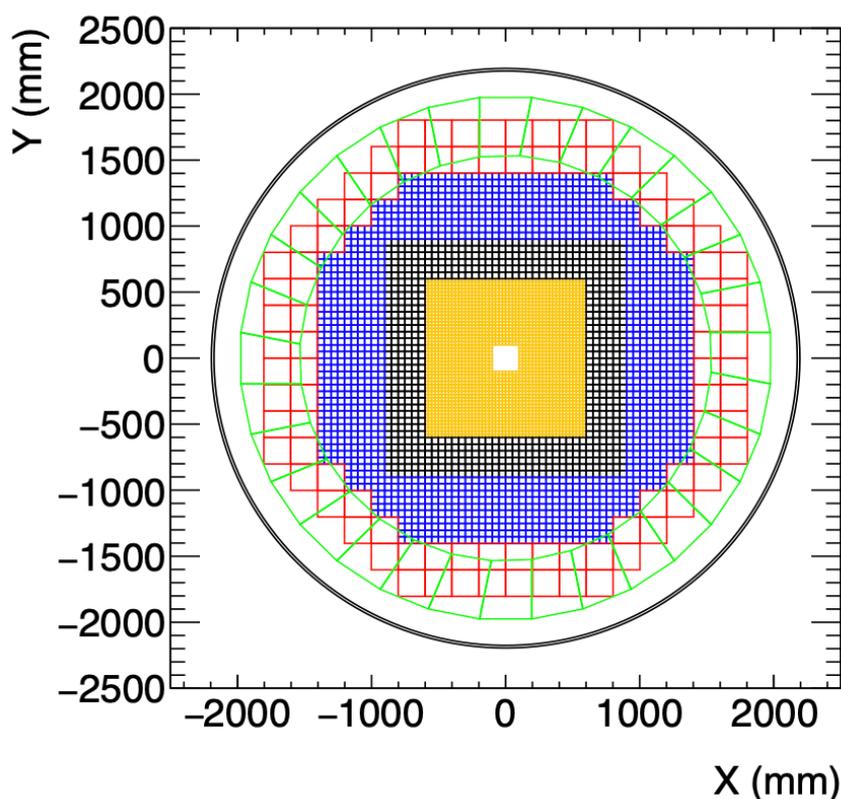


図 1.8 KOTO II 実験のカロリメータの平面図 [2]。中央のオレンジと外側の青と黒の部分はドーブのない CsI 結晶で構成される。現有の CsI 結晶をオレンジと黒の領域にあてる。赤色の部分は veto 検出器を置く。veto 検出器は鉛とプラスチックシンチレータの積層型の予定である。

<sup>\*6</sup> カロリメータに入射した光子は電磁シャワーを作る。しかし、電磁シャワーの一部がビーム上流に飛び、CV にヒットを作る場合がある。この現象を Backsplash と言う。現行の CV の時間分解能は ns オーダーで、カロリメータは 300 ps 程度である。そのため、カロリメータと CV、どちらに先にヒットがあるのか判別できず、信号事象候補の損失につながっている。

## 1.4 プラスチックシンチレータ

### 1.4.1 従来のシンチレータ

従来から広く使われているシンチレータの基剤は、主に3種類ある。ポリビニルトルエン (PVT)、ポリスチレン (PS)、ポリメタクリル酸メチル (PMMA) である。これらの特徴を表 1.3 に示す。PVT と PS には紫外領域に励起、発光ピークがあるが、PMMA にはない。これは PVT と PS はベンゼン環を持ち、PMMA はベンゼン環を持たないからである。PVT と PS はベンゼン環を持つことで、自分自身が弱く発光する。また、蛍光剤と共に使うとベンゼン環から蛍光剤へのエネルギーの移行が効率よく起こるため、蛍光剤がより光る。そのため、PVT と PS ベースのシンチレータの光量は PMMA ベースより高い。発光原理の詳細は第 2 章で述べる。

表 1.3 PVT、 PS、 PMMA の特徴 [9]

基剤	励起ピーク波長 (nm)	発光ピーク波長 (nm)
PVT	260	320
PS	245	310
PMMA	-	-

### 1.4.2 近年開発されているシンチレータ

従来のシンチレータに加えて、近年では UV 硬化アクリル樹脂を用いたシンチレータや量子ドットを用いたシンチレータが開発されている [10]、[11]。

UV 硬化アクリル樹脂とは紫外線をあてると硬化する樹脂の一種である。この UV 硬化アクリル樹脂によるシンチレータは、従来のシンチレータに比べて短時間で作れる。従来のシンチレータは硬化に約 1 週間かかるが、UV 硬化アクリル樹脂を用いたシンチレータは硬化が数分から数時間でできる [10]。また、3D プリンターでもつくれ、従来のシンチレータには無い形にできる。

量子ドットシンチレータには、半導体のナノ結晶の量子ドットを用いる。量子ドットは、発光と減衰が早いだけでなく量子収率が高く、比較的作りやすい。先行研究 [11] ではこの量子ドットを UV 硬化ポリアクリレート基剤に溶解させて量子ドットシンチレータを作った\*7。

## 1.5 本研究の目的

本研究の目的は、UV 硬化樹脂を用いたシンチレータの発光機構を調べることである。UV 硬化アクリル樹脂を用いれば短時間に大量に任意の形にシンチレータを作れる。また、量子ドットを用いれば、従来よりも時間分解能の良いプラスチックシンチレータになり得る。

本研究では、PVT や PS のようにベンゼン環をもった UV 硬化するアクリル樹脂を用いてシンチレータを作り、それがシンチレータとしてどのように働くのか発光機構を調べた。ベンゼン環をもつアクリル樹脂を選んだ理由は、従来の PMMA ベースのシンチレータが PVT、PS ベースのシンチレータに対して発光量が少ないデメリットを補えるのではないかと考えたからである。実際にベンゼン環を持ったアクリル樹脂を用いたシンチレータを作る先行研究 [10] もあり、シンチレータ自体の光量 9100 photons/MeV を得ている。

\*7 先行研究で作られた量子ドットシンチレータは、ペロブスカイトナノ結晶の自己吸収で光量が低く、得られた最大光量は、ELJEN TECHNOLOGY 社の EJ200 との比較で 24% であった。今後の開発には更なる努力が必要である。

本研究で用いるベンゼン環を持つアクリル樹脂については、これまでの研究例はなく、新たな知見となる。本論文ではこの研究について報告する。



1. 基剤間でエネルギーを移行する。
2. 基剤から溶質へエネルギーを移行する。

これらの過程のうち、シンチレータで検出する蛍光に関する過程は2つ目である。従って、ここでは2つ目の過程について説明する。

図 2.2 に有機シンチレータにおける  $\pi$  電子のエネルギー準位を示す。 $S_0$  は基底状態、 $S_1, S_2, S_3$  は励起状態である。励起状態は、そのエネルギー準位にいる電子のスピンによって1重項と3重項の2つの状態に分かれる。1重項は、基底状態にある電子スピンと励起状態にある電子スピンの向きが逆の状態、3重項は励起状態にある電子のスピンが同じ状態である [9]。励起した  $\pi$  電子は励起状態  $S_1$  や  $S_2$  へ移る。励起準位のうち  $S_2$  や  $S_3$  へ励起した  $\pi$  電子は、最低励起準位  $S_{10}$  に光を出さずに移る。最低励起準位へ移った後、基剤から溶質へのエネルギー移行は以下の2つがある。

1. 基底状態  $S_0$  へ光を出して遷移する (輻射遷移)。この時の光を溶質の分子が吸収する。
2. 基底状態へ遷移する前に、溶質に光を出さずにエネルギーを移行する (無輻射遷移)。

一般的に使われている溶質の濃度 (基剤に対して 0.1 から 1% [9]) では、無輻射遷移が支配的である。

溶質の  $\pi$  電子は、これらの過程によるエネルギー移行を経て、励起する。最終的に実験で観測される蛍光は、溶質のスピン1重項の励起状態  $S_1$  の最低準位である  $S_{10}$  から基底状態  $S_0$  への遷移によるものである。 $S_1-S_3$  や  $S_1-S_2$  間の遷移においては蛍光が出ない [9] ので、蛍光は観測されない。

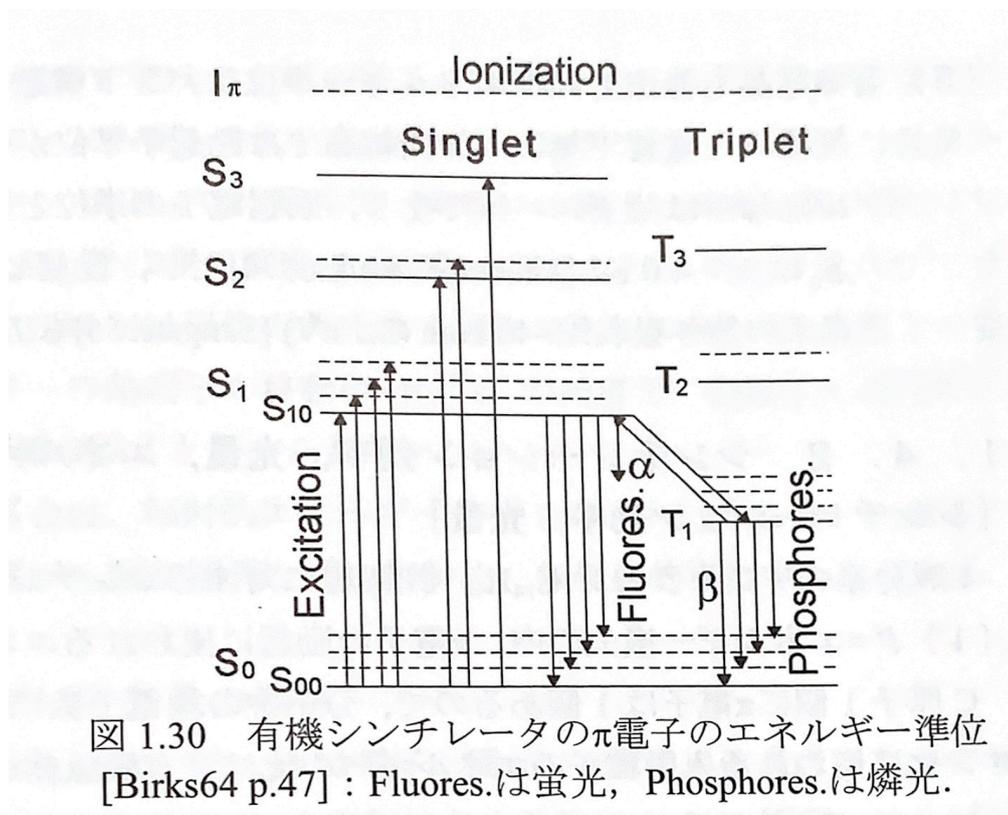


図 2.2 有機シンチレータにおける  $\pi$  電子のエネルギー準位 [9]。図中の矢印は電子の励起や脱励起を表す。

## 2.2 蛍光剤の種類

プラスチックシンチレータで用いられる蛍光剤 (=第1 溶質) について述べる。蛍光剤に求められる性質 ([9]) の一部を下に記す。

- 蛍光量子効率 ( $\frac{\text{蛍光として出した光子数}}{\text{吸収した光子数}}$ ) が大きい
- 発光スペクトルが PMT などの光センサーの感度スペクトルに合う
- 基剤への溶解度が大きい

第1 溶質には DPO, butyl-PBD がよく用いられる。DPO, butyl-PBD の特徴を表 2.1 に、構造式を図 2.3、図 2.4 に示す。

表 2.1 DPO, butyl-PBD の特徴 [9]

名称	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	励起ピーク波長 (nm)	発光ピーク波長 (nm)	蛍光量子効率
DPO	1.06	303	364	0.83
butyl-PBD	1.10	302	367	0.69

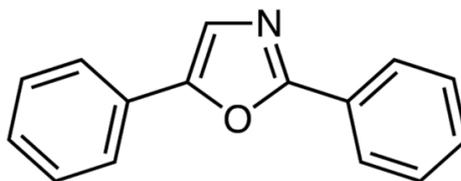


図 2.3 DPO の構造式 [12]

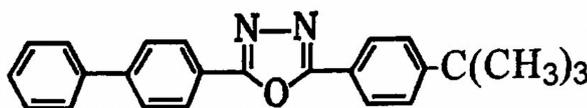


図 2.4 butyl-PBD の構造式 [9]

この特徴を踏まえ、本研究ではより蛍光量子効率が高い DPO を蛍光剤として用いた。

## 2.3 波長変換剤の種類

波長変換剤 (=第2 溶質) に求められる性質は、蛍光剤とほぼ同じである。表 2.2 に主な波長変換剤を示し、その構造式を図 2.5、2.6、2.7 に示す。

表 2.2 主な波長変換剤 [9]

名称	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	励起ピーク波長 (nm)	発光ピーク波長 (nm)	蛍光量子効率
POPOP	1.20	385	418	0.77
DMPOPOP	1.17	363	429	0.77
bis-MSB	1.08	347	412	~0.8

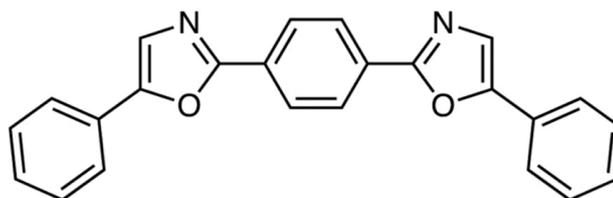


図 2.5 POPOP の構造式 [13]

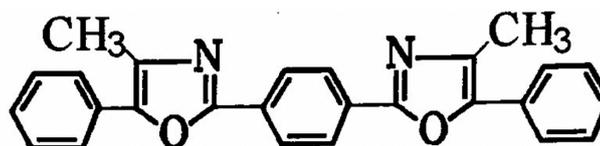


図 2.6 DMPOPOP の構造式 [9]

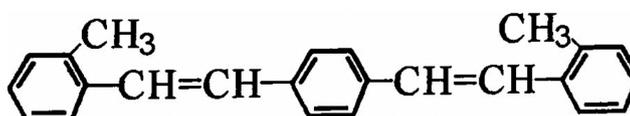


図 2.7 bis-MSB の構造式 [9]

波長変換剤は、蛍光剤の発光波長よりも長い波長の発光を得たい場合に用いる。長波長側へ波長を効率よく変換することが重要である。そのため波長変換剤の励起ピーク波長は、蛍光剤の発光ピーク波長に近い方が良い。また、波長変換剤の発光ピーク波長は、最終的に読み出したい波長に近い方が良い。本研究では次章で述べるアクリルシンチレータの先行研究で実績があった POPOP を用いた。

## 2.4 アクリルシンチレータの発光原理と期待されること

PMMA の構造式を図 2.8 に示す。PMMA はベンゼン環を持たない基剤である。そのため、PVT、PS と異なり自らは発光しない。PVT、PS では基剤中の  $\pi$  電子が励起することで溶質に効率よくエネルギーを移行した。しかし、PMMA は  $\pi$  電子を持たないため放射線が入射しても効率よく溶質にエネルギーを移行できない。そのため、PMMA ではナフタレンなどを加えて、 $\pi$  電子がないデメリットを補う [9, 14, 15]。ここではナフタレンを例に説明する。PMMA からナフタレンを介し、他の溶質へエネルギーを移す [14]。エネルギーの移行は無輻射遷移である。従って、PMMA を基剤とするシンチレータの光量は、ナフタレンの濃度に依存する。また、最終的に得られる光量も PVT、PS ベースに劣る。その一方で、PMMA には安価であることと、透明度が高いというメリットがある。

これらの特徴を踏まえ、ベンゼン環を有するアクリル樹脂を用いれば、PVT、PS に同等の光量でかつ透明度の高いものができるのではないかと考えた。

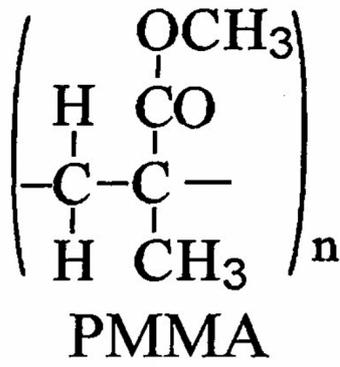


図 2.8 PMMA の構造式 [9]

## 第3章

# シンチレータの材料と作成

この章では、作成したシンチレータに用いた基剤と溶質、そして作成にあたって考慮した点を述べる。

### 3.1 本研究に用いる基剤とシンチレータ剤

#### 3.1.1 アクリレートモノマー

UV 硬化アクリル樹脂とは、紫外線を照射すると固まるアクリレートモノマーでできる樹脂である。モノマーとは、高分子 (ポリマー) を構成する単位分子のことである。アクリレートとはアクリル酸エステル of 総称で、透明性が高い特徴を持つ。本研究では基剤にアクリレート系モノマー、ダイセル・オルネクス株式会社の EBECRYL-150 (EO 変性ビスフェノール A ジアクリレート) を用いた。EBECRYL-150 の構造式を図 3.1 に示す。EBECRYL-150 のモノマーはベンゼン環を 2 つ持つ。粘度が 1100 mPa・s と、粘り気のある液体である。モノマーの選定には、北村化学産業株式会社の角田耀氏に下記のリストを作っていたいただき、その中からベンゼン環のあるものを選んだ。

- EBECRYL-150(ダイセル・オルネクス社)
- IRR-214K(ダイセル・オルネクス社)
- EBECRYL 8701(ダイセル・オルネクス社)
- ニューフロンティア R-1220(第一工業製薬社)
- GX-8801A(第一工業製薬社)

ベンゼン環のあるモノマーを選定する際には、静岡大学電子工学研究所ナノビジョン研究部門の越水正典氏に助言をいただいた。

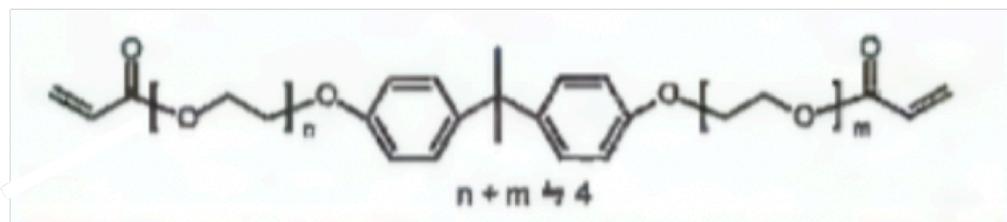


図 3.1 EBECRYL-150 の構造式 [16]

### 3.1.2 蛍光剤と波長変換剤

本研究では蛍光剤に DPO、波長変換剤に POPOP を用いた。DPO の発光波長 364 nm の蛍光を、POPOP を用いて PMT の感度が高い波長 420 nm の光に変える。DPO と POPOP の実際の薬品の様子を図 3.2 と図 3.3 に示す。DPO は白色の固体で、POPOP は薄黄色の針状の固体である。

DPO と POPOP を用いた理由は2つある。1つ目は一般的に広く用いられる組み合わせであり、先行研究 [10] でも用いられたからである。2つ目は、BC404 と同じく PMT の感度が良い 420 nm 付近に発光波長のピークを作るからである。

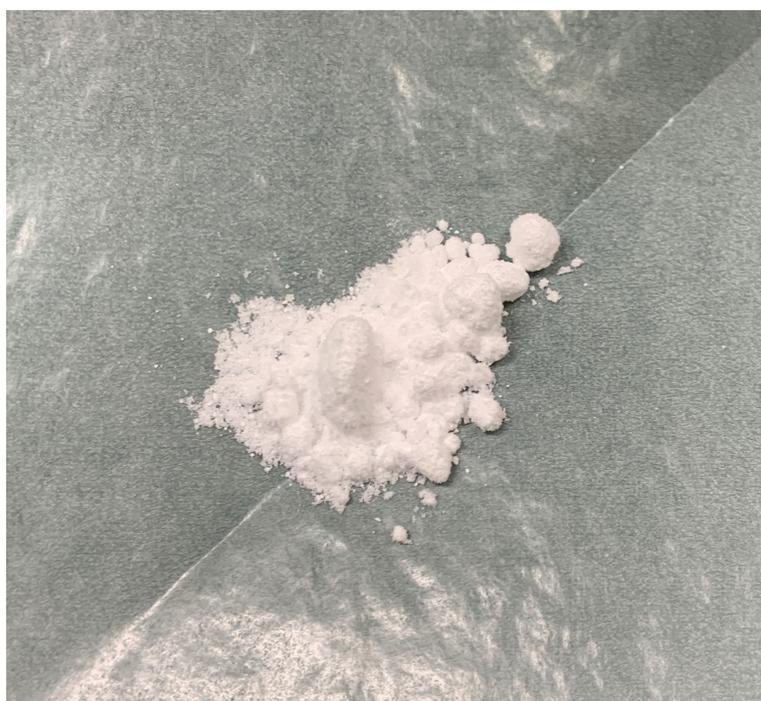


図 3.2 DPO の様子。白色の粉末である。



図 3.3 POPOP の様子。中央に固まってあるのが POPOP である。薄黄色の繊維状の固体の集まりである。

### 3.1.3 光重合開始剤

光重合開始剤とは、紫外領域の光を吸収してラジカル<sup>\*1</sup>を発生させる薬品である。一般的に物質の多くは原子間の結合エネルギーは 5 ~ 8 eV である [17]。紫外領域の 360 nm の光はエネルギー 3.4 eV である。これは重合を開始させるには十分なエネルギーではない。そのため、光重合開始剤は UV 硬化樹脂を作る上では必須とされる。しかし、先行研究では光重合開始剤が発光を阻害し、光量が減る可能性が指摘された [18]。本研究では第 3 章で述べるように、波長 365 nm の紫外光を 2 mW/cm<sup>2</sup> の強度で照射し、光重合開始剤を用いずにアクリル樹脂を用いたシンチレータを作ることができた。そのため、光重合開始剤は第 5 章で述べる光重合開始剤の発光機構に与える影響を調べる研究以外には使わなかった。

第 5 章に述べる研究で用いた光重合開始剤は、Omnirad TPO-L, Omnirad TPO-N, そして Omnirad 184 である。それぞれの構造式を図 3.4, 3.5, 3.6 に示す。これらの選定は、北村化学産業株式会社の安達孝二氏からの助言を元に行った。それぞれの特徴を表 3.1 に示す。光重合開始剤の種類によるシンチレータへの影響は第 5 章で述べる。

表 3.1 光重合開始剤の特徴。

名称	色	状態	特性
Omnirad TPO-L	黄色	液体	数百 $\mu\text{m}$ 以上の厚膜向け。作成後の樹脂の変色 (黄変) がある。
Omnirad TPO-N	薄黄色	固体、粉末	数百 $\mu\text{m}$ 以上の厚膜向け。作成後の樹脂の変色は少ない。
Omnirad 184	白色	固体、粉末	厚み 200 $\mu\text{m}$ 以下向け。作成後の樹脂の変色は少ない。

\*1 不対電子を持つ原子や分子のこと。

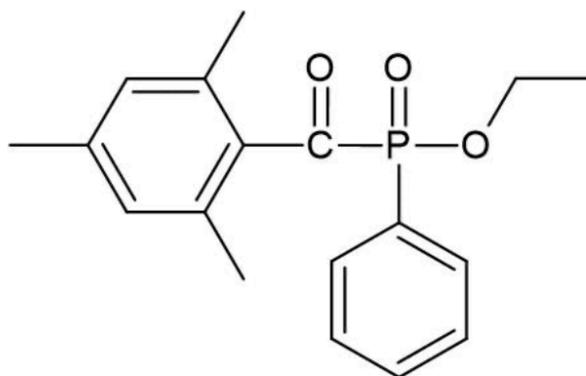


図 3.4 Omnirad TPO-L の構造式 [19]

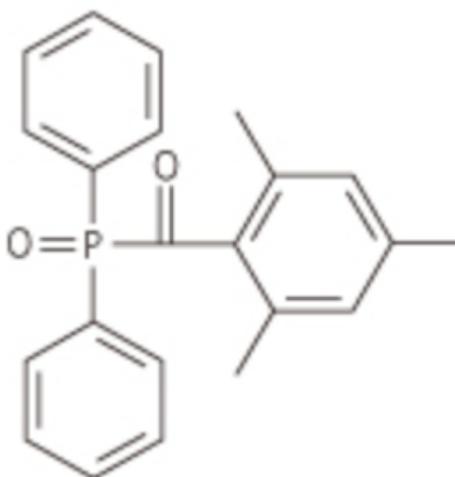


図 3.5 Omnirad TPO-N の構造式 [20]

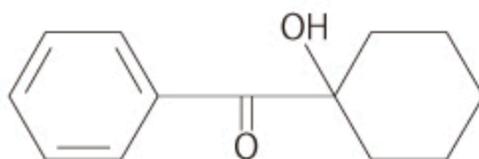
**Omnirad 184** (former Irgacure 184)

図 3.6 Omnirad 184 の構造式 [21]

## 3.2 作成手法

EBECRYL-150 に DPO と POPOP を溶かし、溶液をつくった。作った溶液を瓶に入れて紫外光を照射した。一定時間照射した後に瓶<sup>\*2</sup>を割り、固体のシンチレータを取り出した。

### 3.2.1 作成手順

本研究では、DPO と POPOP のモル比 80:1 の DPO 濃度 20% をベースにシンチレータを作った。この DPO 濃度は、基剤に対する濃度 ( $\frac{\text{DPO の質量}}{\text{基剤の質量}} \times 100$ ) である。DPO と POPOP のモル比は先行研究 [10] を参考にした。シンチレータ溶液の作成手順を図 3.7 に示す。

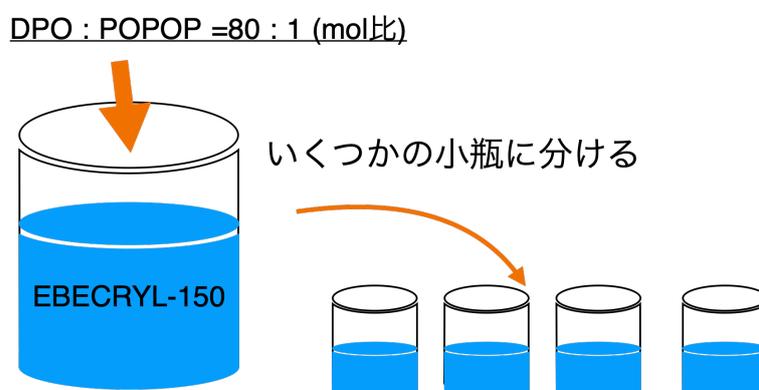


図 3.7 作成手順のイメージ図

溶液の作成方法は次の通りである。EBECRYL-150 を瓶に入れ、その後 DPO と POPOP を加えた。溶質を加えた EBECRYL-150 を、LACHOL 社のプラスチック加熱マグネチックスターラで溶液の温度が 80 度以上になる条件下で 5 時間混ぜた。この条件を用いた理由は 3.2.3 項で述べる。

光重合開始剤を使う場合は、溶質が完全に溶けきったことを目視で確認してから加え、再度混ぜた。光重合開始剤が溶液に混ざったと目視で判断した後に、調べたい研究課題に合わせて溶液を調整した後に小瓶に分けた。

溶液を入れた小瓶は、UVP 社の 15 W、365 nm の UV ベンチランプの下に置き、 $2 \text{ mW/cm}^2$  の強度で一定時間紫外光を照射して硬化させた。実際に照射している様子を図 3.8 に示す。溶液を入れた小瓶は図中央にある。硬化時間中に埃などが入るのを防ぐために、小瓶の上に石英ガラスを置いた。また、小瓶は、事前にデジタル紫外線強度計で UV 照射強度が  $2 \text{ mW/cm}^2$  であることを確認した場所のみ置いた。

一定時間紫外光を照射し、固まったことを確認してから小瓶を割ってシンチレータを取り出した。溶液が固まったかどうかは、溶液表面をピンセットなどで触って確かめた。なお今回作成したシンチレータの大きさは、直径 2 cm、厚さ 3 mm である (図 3.9)。

<sup>\*2</sup> 硼珪酸ガラスでできた小瓶である。

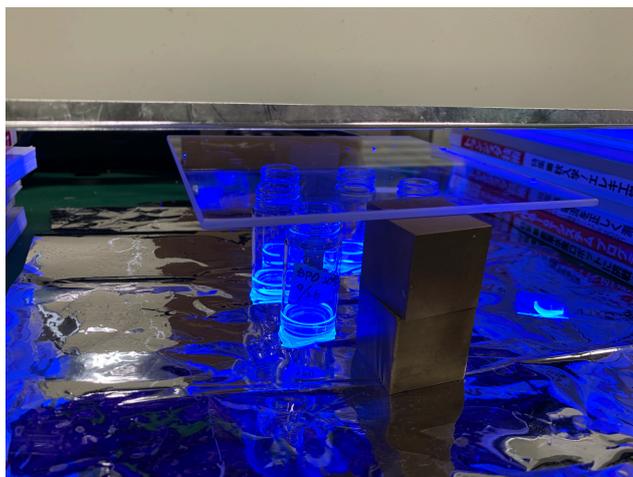


図 3.8 UV 照射している様子。今回用いた UV ランプは、UVP 社の 15 W, 365 nm の UV ベンチランプである。

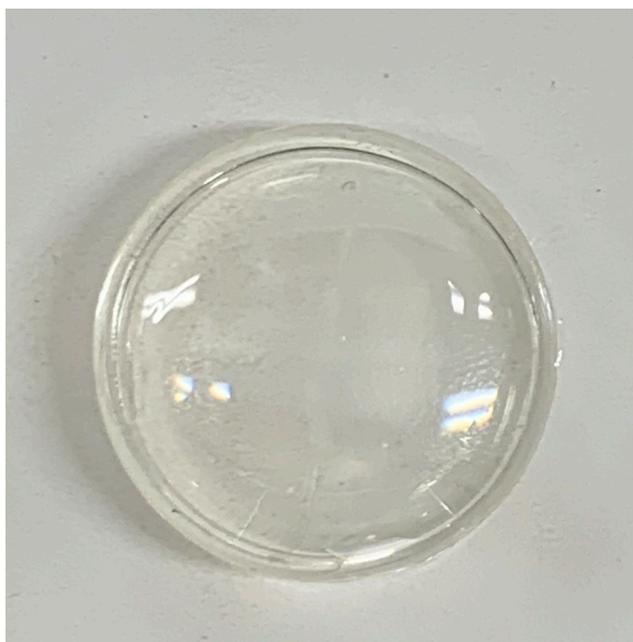


図 3.9 作成したシンチレータ

### 3.2.2 作成にあたって研究した条件

シンチレータを作成する際に研究した条件を以下に記す。

- 混合時の温度
- 混合時間
- 紫外線照射時間
- 光重合開始剤の有無とその種類
- 窒素置換と真空脱気の必要性
- 蛍光剤の濃度

- 蛍光剤と波長変換剤の混合割合

これらの条件のうち、混合時の温度と混合時間については、溶液の様子を目視で観察して決めたため本章 3.2.3 項で述べる。他の条件に関する調査は放射線に対する発光を用いたので第 5 章で述べる。

### 3.2.3 混合時の温度と混合時間

混合時の溶液の変化を時間の経過に応じて図 3.10 に示す。図の左から混合前、混合開始直後、混合中の溶液 (DPO が溶けて POPOP が溶けていない状態)、そして混合終了時の様子である。本研究では、図中の (d) の状態をもって DPO と POPOP が完全に溶けきったと目視で判断した。なお、モノマーに DPO だけ溶かした時の経験から、DPO は混合開始 20 分程度で溶解するが、POPOP は溶液の温度が 80 度を超えないと溶解しないことがわかった。実際に 75 度付近で 5 時間混合し続けた時の溶液の状態を図 3.11 に示す。溶液中に細長い線状のものが浮遊していることがわかる。これは、図 3.10 の (c) でも確認できる線状の結晶である。混合初期からあることと、図 3.3 の比較より、この結晶は POPOP 結晶と判断した。この経験を踏まえて、混合時の条件は溶液の温度 80 度以上とした。また、溶液の温度が 80 度に達しても、POPOP はすぐに溶解せず、目視で確認できなくなるまでに 5 時間かかった。従って混合時の温度と時間は 80 度以上、5 時間と決めた。

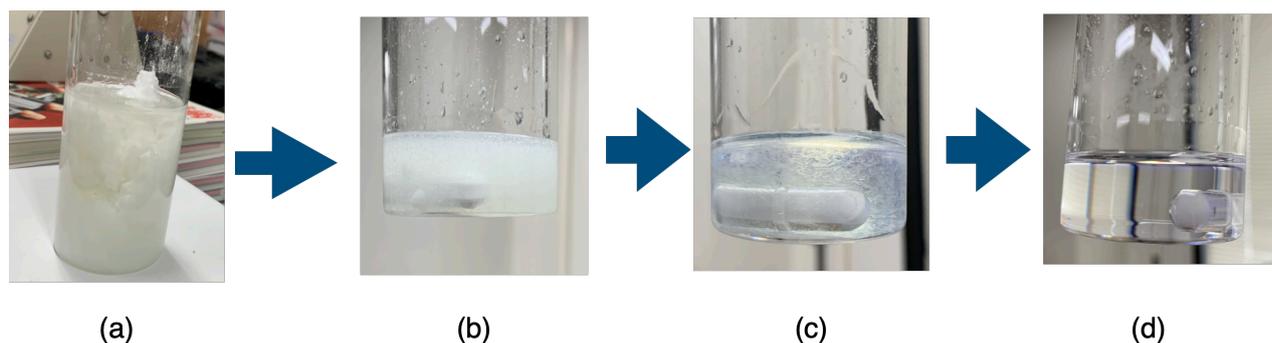


図 3.10 シンチレータ溶液を作成している時の様子。(a) は混合前、(b) は混合開始直後、(c) は DPO がほぼ溶解し、POPOP が残っている状態、(d) は DPO と POPOP 両方が完全に溶け切った時の様子である。

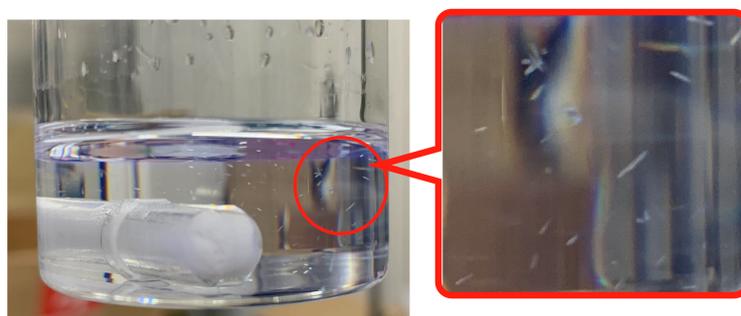


図 3.11 溶液の温度が 75 度の時の様子。溶液に見える線状の浮遊物は POPOP 結晶である。

## 第 4 章

# 放射線源を用いた光量測定

この章では、作成したシンチレータの放射線に対する発光量を、市販品の発光量と比較して調べた。本章では放射線源\*1を用いた光量測定の測定原理と測定のセットアップ、そして測定方法の妥当性について述べる。

### 4.1 測定原理

この節では放射線源  $^{241}\text{Am}$  を用いた実験の測定原理について述べる。

#### 4.1.1 低エネルギー単色ガンマ線による光電吸収ピーク

プラスチックシンチレータは第 2 章で示したように炭素や水素から成る。PVT ベースならば C:H=9:10、PS ベースならば C:H=8:8 である。

数 keV から 100 MeV の光子と物質の相互作用は主に 3 つある。

1. 光電効果
2. コンプトン効果
3. 対生成

である。そこで、これら 3 つの相互作用がシンチレータ中で起こる割合を、シンチレータを CH という物質で近似し、NIST XCOM[22] を用いて調べた。結果を図 4.1 に示す。図の横軸は光子のエネルギーを示し、縦軸は質量減衰係数を表す。質量減衰係数と断面積の間には式 (4.1) の関係が成り立ち、質量減衰係数は断面積に比例する。

$$\sigma = \frac{\mu m_a}{N_a} \quad (4.1)$$

ここで  $\sigma$  は断面積、 $\mu$  は質量減衰係数、 $m_a$  と  $N_a$  はそれぞれモル質量とアボガドロ定数である。光子のエネルギーが数 10 keV 以下の領域では光電効果が支配的に起こる。従って、光子のエネルギーが低ければ、光子とシンチレータの相互作用から、光電効果に応じたエネルギー損失、光電吸収ピークを観測出来る。

保有している線源の中で  $^{241}\text{Am}$  は 59.5 keV のガンマ線を出す。図 4.1 より、60 keV 付近ではコンプトン散乱の質量減衰係数が光電効果より 30 倍程度大きいのが、光電吸収ピークを観測できる可能性がある。光電吸収ピークはガンマ線の全エネルギーに対応するため、シンチレータのエネルギー損失あたりの発光量を得やすい。そのため、本研究では  $^{241}\text{Am}$  を用いた。なお、 $^{241}\text{Am}$  を用いて光電吸収ピークを観測できるかは、4.1.3 節で述べる。 $^{241}\text{Am}$  の崩壊の特徴については次項で述べる。

本研究では  $^{241}\text{Am}$  を用いて光電効果に応じた発光量を観測した。観測した発光量を市販品と自作したシンチレー

\*1 正しくはチェックソースのことである。

タで比較し、相対的な光量を評価した。

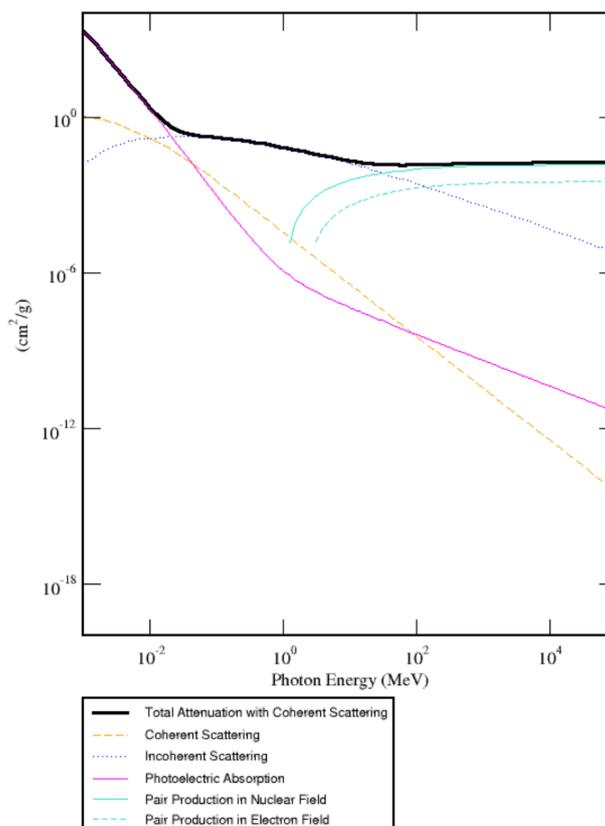


図 4.1 CH の物質と光子の相互作用 [22]。縦軸は質量減衰係数、横軸は光子のエネルギーである。

### 4.1.2 <sup>241</sup>Am からの低エネルギー単色ガンマ線の利用

<sup>241</sup>Am は半減期が 432.6 年の放射性同位体である。表 4.1 に崩壊の際に出る粒子の種類とエネルギー、放出の割合を示す。<sup>241</sup>Am は  $\alpha$  崩壊で <sup>237</sup>Np に崩壊する。この際に 59.5 keV のガンマ線を出す。また、ガンマ線を出すかわりに内部転換によって電子を出すこともある。この内部転換電子の主なエネルギーは、10.1 keV、37.1 keV である。本研究では低エネルギーの単色ガンマ線のみを使用したい。そのため、 $\alpha$  線や内部転換電子を止めるために、線源自身を十分な厚みのアルミホイルで覆うことにした。

表 4.1 <sup>241</sup>Am の主な崩壊 [23]

出てくる粒子	エネルギー (keV)	放出の割合 (%)
$\alpha$	5486	84.8
$\gamma$	59.5	35.9
$e^-$	37.11	30.2
$e^-$	10.1	35

覆うアルミホイルの厚みは、NIST の ASTAR[24] と ESTAR[25] から求めた。5.5 MeV の  $\alpha$  線のアルミニウム中の飛程は 0.25 mm[24]。37.1 keV の電子のアルミニウム中の飛程は 1.4 mm[25] である。本研究では、0.9 mm

厚のアルミホイルを8層重ね、線源を7.2 mm厚のアルミホイルで覆うことにした。本研究では $^{241}\text{Am}$ の59.5 keVの単色ガンマ線のみを使う。

### 4.1.3 測定される光電吸収ピークと光量の関係

モンテカルロシミュレーション (MC) を用いてシンチレータの光量とエネルギーの関係を調べた。59.5 keV のエネルギー損失に対応するシンチレータの光量を  $\frac{N [\text{p.e.}]}{59.5 \text{ keV}}$  と定義する。ただし、これは PMT を通して観測した光量の意味であり、シンチレータで自体の発光量ではない。

MC<sup>\*2</sup>を用いて、59.5 keV のガンマ線を、直径 10 mm、高さ 5 mm の円筒形のシンチレータ<sup>\*3</sup>に真上から垂直に入射させた。入射したガンマ線のエネルギー分布がシンチレータの光量によってどう変わるのかを調べるために、次のような手順で解析する。

1. 光量  $\frac{N [\text{p.e.}]}{59.5 \text{ keV}}$  を仮定する。
2. シンチレータに落としたエネルギーの分布を作る。(図 4.2)
3. エネルギー分布を (エネルギー) keV  $\times \frac{N [\text{p.e.}]}{59.5 \text{ keV}}$  を用いてそのエネルギーに対応する光量の期待値に変換し、その分布を作る。(図 4.3)
4. 3 で作った期待値に対応する光量分布の各ビンの総数に対し、各ビンの光電子数を期待値にもつポアソン分布をつくる。この際、乱数の生成数を 10 にして統計数を増やした。
5. 全てのビンに対して同じ操作をし、ポアソン分布のヒストグラムを足し合わせる。
6. 作った光量分布の横軸を、光量 [p.e.]  $\times \frac{59.5 \text{ keV}}{N [\text{p.e.}]}$  でエネルギー分布に直す (図 4.4)。
7. エネルギー分布の 59.5 keV 付近をガウシアンでフィットする
8. フィットした値が 59.5 keV と誤差の範囲内で一致するか調べる。

上記の過程 1 の分布の例を図 4.2、3 の分布の例を図 4.3 に示す。シンチレータの光量は 50 p.e. の例である。上記の過程 5 の分布の例を図 4.4 に示す。左から順に、光量 10 p.e.、50 p.e.、100 p.e. の時の分布である。60 keV 付近の分布が光電吸収で、左側の連続分布はコンプトン効果によるものである。光量 10 p.e. の時は、光電吸収とコンプトン効果による分布がはっきり分かれていない。そのため、光電吸収ピークが見えず不定性が大きくなる。一方で、光量 50 p.e. と 100 p.e. では光電吸収ピークがコンプトン効果による分布に埋もれていない。

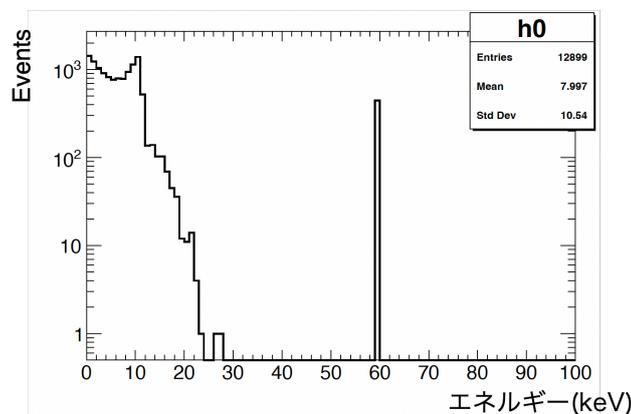


図 4.2 MC で作ったエネルギー分布。59.5 keV に光電吸収ピークがあり、左側にコンプトン散乱による寄与がある。

\*2 物質と放射線の相互作用をシミュレートできる Geant4 を使った MC を用いた。

\*3 この大きさは、4.4 説で述べる実験で使う市販品のシンチレータの大きさである。

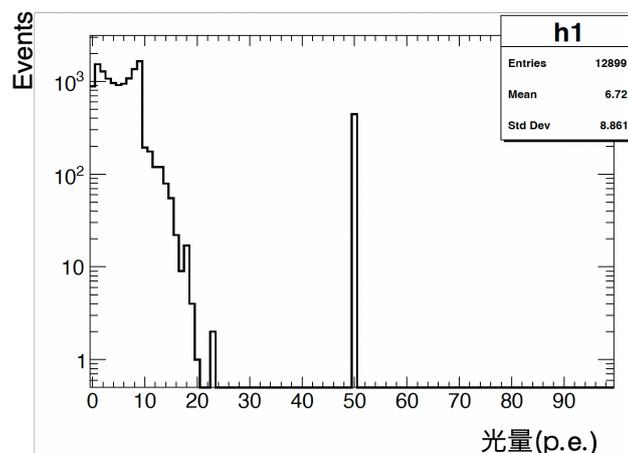


図 4.3 MC で作ったエネルギー損失に対応した光量の分布。光量 50 (p.e.) に光電吸収ピークがある。

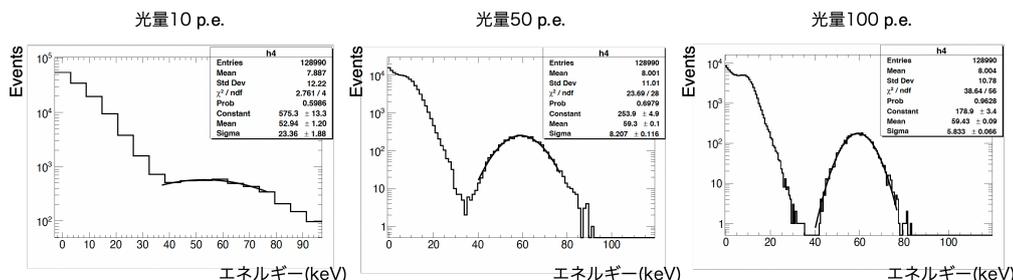


図 4.4 光量のポアソン分布を考慮して作ったエネルギー分布。左から順番に光量 10 p.e.、50 p.e.、100 p.e. の時のエネルギー分布である。

解析結果を図 4.5 に示す。横軸が光量、縦軸がエネルギーである。図中の赤線は 59.5 keV を表す。シンチレータの光量が 10 p.e. と 20 p.e. の場合、59.5 keV と  $2\sigma$  以上離れるため、観測される光電吸収ピークは 59.5 keV に対応しない。30 p.e. から 100 p.e. では、59.5 keV とフィット結果の間に信頼度 95% で統計的な有意差はないため、観測される光電吸収ピークは 59.5 keV に対応する。

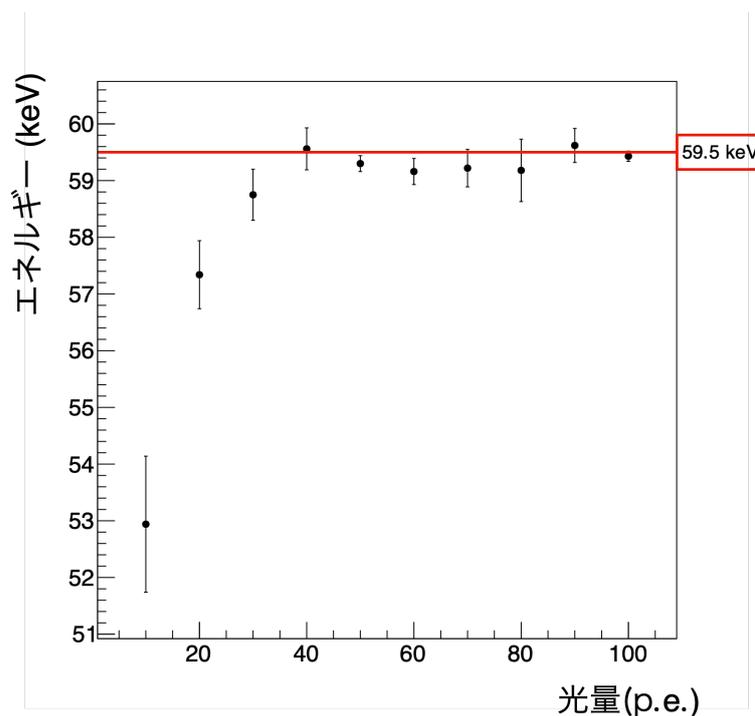


図 4.5 シンチレータの光量 (p.e.) とエネルギーの関係

## 4.2 実験のセットアップ

本研究の実験のセットアップを図 4.6 に示す。図 4.6(a) に概略を、(b) に写真を示す。前節で述べたように、線源  $^{241}\text{Am}$  をアルミホイルで覆い、作成したシンチレータの上に置いた。作成したシンチレータから出てくるシンチレーション光は、シリコーン (TSE3032) で作った光学結合用の透明なゴム状樹脂 (シリコーンクッキー) を通して PMT\*4 で読み出した。用いた PMT はバイアルカリ光電面で、有効受光面の大きさが直径 46 mm のである。感度波長は 300 nm から 650 nm で、感度波長のピークは 420 nm である。なお、シンチレータは、光量を稼ぐためにシリコーンクッキーに接する面以外をテフロンテープで覆った。

実験では、測定中に線源がずれることを防ぐために養生テープを用いて線源と PMT を一体化した後に、全体をブラックシートで覆った。

\*4 浜松ホトニクス の H7195 を用いた。

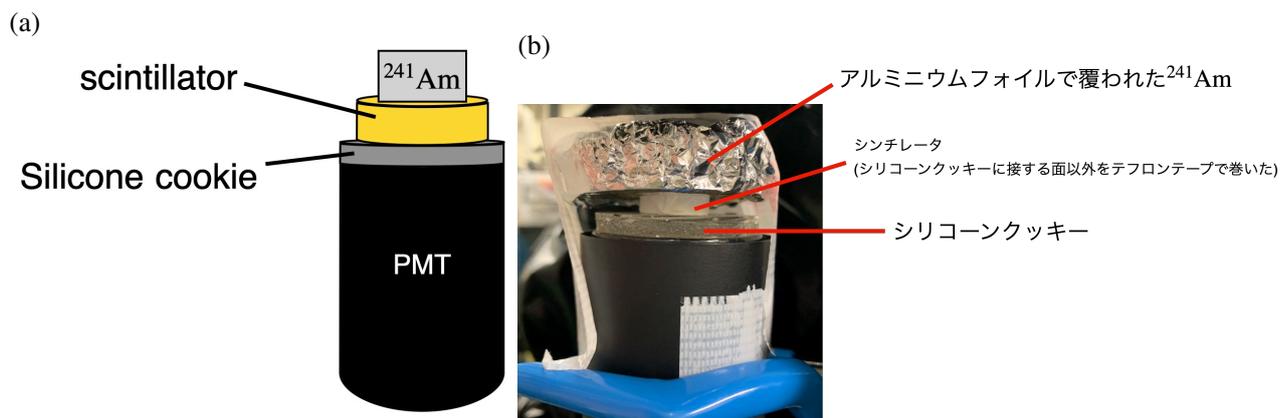


図 4.6  $^{241}\text{Am}$  を用いた実験のセットアップ。(a) 概略図。図の上から  $^{241}\text{Am}$ 、作成したシンチレータ、シリコンクッキー、PMT である。(b) 実際の写真。作成したシンチレータはテフロンテープで巻くことで光量を稼いだ。

### 4.3 データ取得方法

本研究ではデータの取得に、KOTO 実験で使う波形取得用のサンプリング周波数 500 MHz の ADC[26] を用いた。データの取得方法を図 4.7 に示す。PMT から読み出した信号を Liner Fan-in/Fan-out(Linear FIFO) を用いて 2 つに分けた。分けた信号のうち、1 つは 500 MHz ADC のチャンネル (ch 0) に入れた。もう片方は、ディスタクリミネータ (Discriminator) に入れた。ディスタクリミネータで任意の閾値を設定し、その値を超えたものを Master ADC\*5 と MT clock\*6 を通じてトリガー (Trigger) とした。Master ADC は MT clock にトリガーを出すように信号を送り、信号を受けた MT clock がトリガー信号を 500 MHz ADC に送ることで、500 MHz ADC がデータをとる。トリガー信号の波形は、500 MHz ADC のチャンネル (ch 1) で記録した。ディスタクリミネータにおける閾値は、オシロスコープで見える光電吸収の波形の高さより低めに設定した。

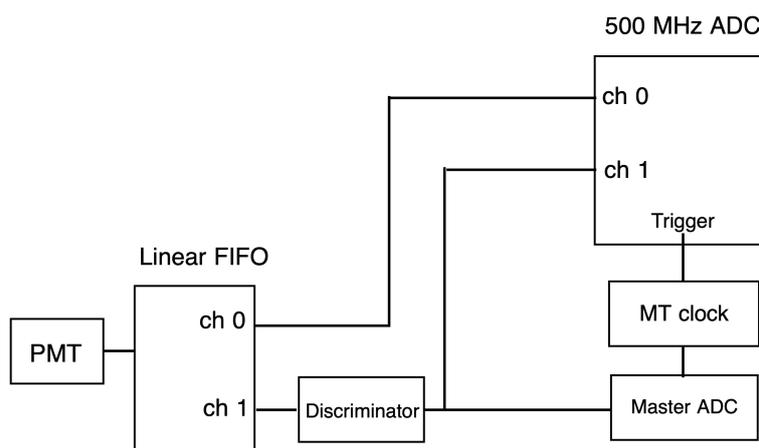


図 4.7  $^{241}\text{Am}$  を用いた実験の DAQ。Discriminator からきたトリガー信号は Master ADC に送られる。Master ADC は MT clock にトリガーを出すように信号を送る。信号を受けた MT clock はトリガー信号を 500 MHz ADC に送り、500 MHz ADC がデータをとる。

\*5 KOTO 実験用の VME モジュール。16 チャンネル 125 MHz の波形取得 ADC である。トリガー処理用のファームウェアが書き込まれている。

\*6 KOTO 実験用の VME モジュールだが、現在の KOTO 実験では使っていない。クロックとトリガーを処理する。

## 4.4 市販シンチレータによる測定手法の検証

本研究における  $^{241}\text{Am}$  の単色ガンマ線の測定手法が妥当であるか調べるために、プラスチックシンチレータ、Pilot-U(光量  $1.1 \times 10^4$  photons/MeV、減衰時間 1.36 ns、蛍光波長ピーク 391 nm[27]) を用いて検証を行った。Pilot-U の大きさは直径 10 mm、厚み 5 mm の円筒形である。実験のセットアップは図 4.6 と同じである。Pilot-U を反射材のテフロンテープで巻き、シリコンクッキーの上に置いた。

### 4.4.1 データの解析方法

Pilot-U の波形データの例を図 4.8 に示す。横軸は clock (1 clock=2 ns) で、縦軸は波形の高さをデジタル値 (ADC count) である。70 clock 付近にあるピークが Pilot-U 由来の波形である。サンプリング波形の最初の 10 点の平均値をペダスタルとした。次に、波形の最大値 (ピーク) に対応する clock の値を調べた。図 4.9 に結果を示す。全ての波形のピークは 50 clock から 100 clock の範囲内にあることがわかる。この結果より、50 clock から 100 clock の範囲内で波形のピークを探した。このピークの時間の 10 clock 前から 20 clock 後ろまでの全てのサンプルに対し、ADC count 値からペダスタルの値を引いたものを足し合わせた (図 4.10)。本研究では足し合わせた値を Integrated ADC 値と定義する。

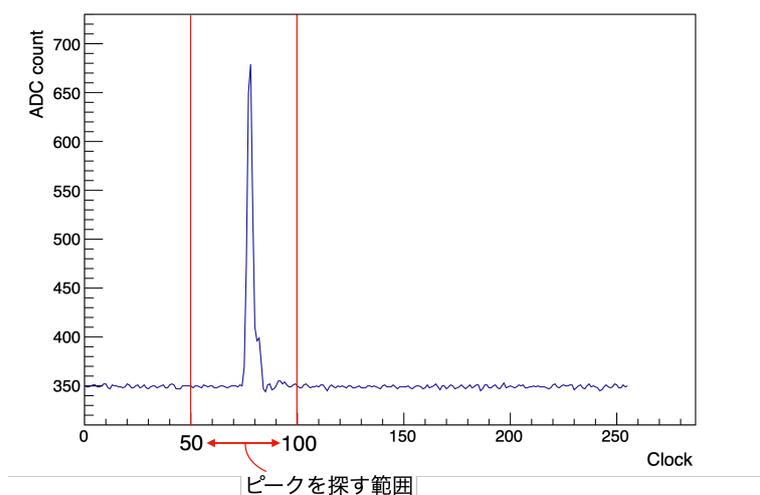


図 4.8 Pilot-U の波形。横軸は clock で、1 clock=2 ns である。50 clock から 100 clock の範囲内で波形ピークを探した。

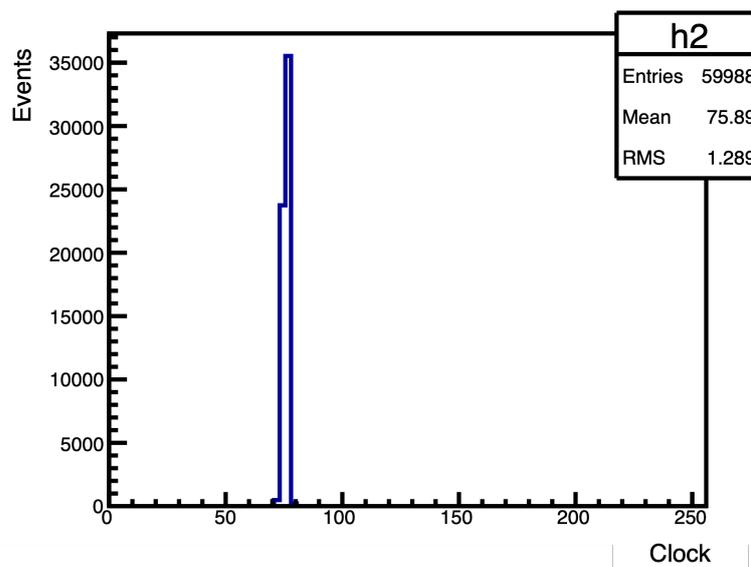


図 4.9 Pilot-U のピークに対応した clock の分布。横軸の clock は、1 clock=2 ns である。縦軸はイベント数である。

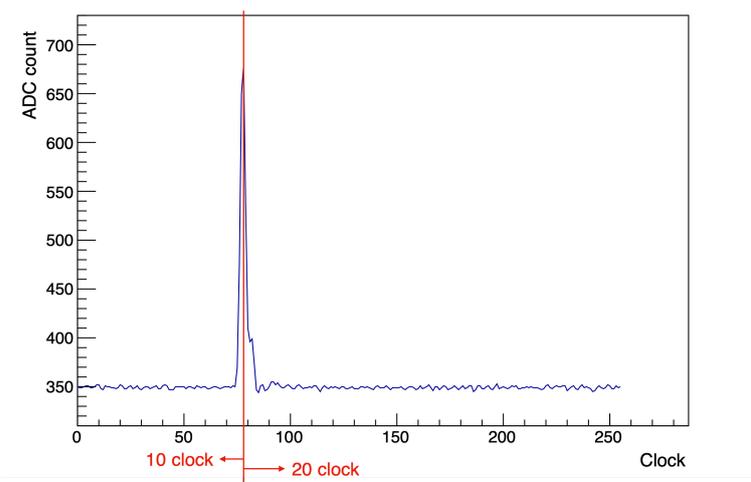


図 4.10 波形の積分範囲。波形のピーク値から前に 10 clock, 後ろに 20 clock の範囲で ADC count 値の足し合わせを行った。

#### 4.4.2 光電吸収ピークの検証

前項で述べた波形データの足し合わせで得られた Integrated ADC 値の分布を、図 4.11 に示す。横軸は Integrated ADC 値で、縦軸はイベント数である。4.1.3 項で示した図 4.4 との比較より、図中の 5000 付近の分布は光電吸収に対応する。

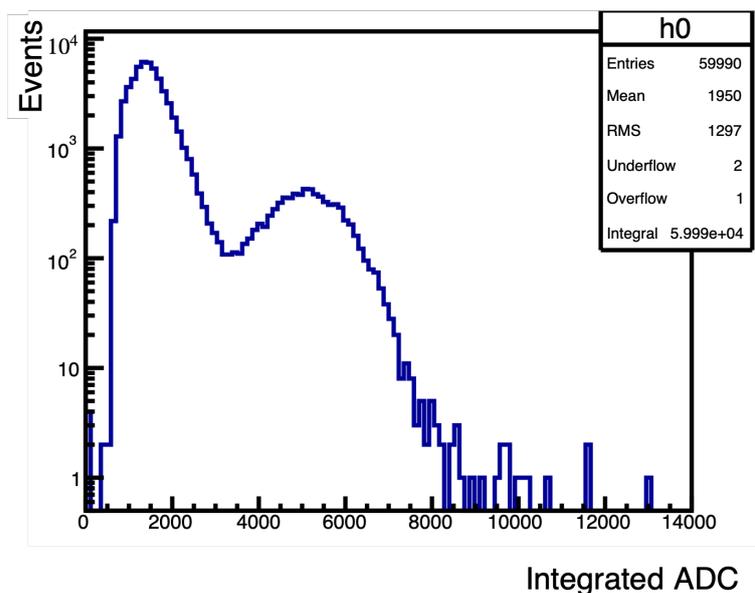


図 4.11 Pilot-U の Integrated ADC 分布。横軸は Integrated ADC 値で、縦軸はイベント数である。

#### 4.4.3 市販シンチレータの絶対光量

PMT の 1 光電子校正を行い、Pilot-U の光電吸収ピークの Integrated ADC 値に相当する光量を確かめた。

1 光電子の波形を図 4.12 に示す。波形中央のピークが 1 光電子によるものである。データの解析方法は、Pilot-U の解析と同様である。ただし、ピークから前後 5 clock の範囲内で ADC 値を足し合わせた。この Integrated ADC 値の分布を図 4.13 に示す。図の 80 付近のピークが 1 光電子のピークで、0 付近の分布はペDESTALである。1 光電子に相当する Integrated ADC 値 ( $C_{p.e.}$ ) は、分布をガウシアンでフィットして求めた。

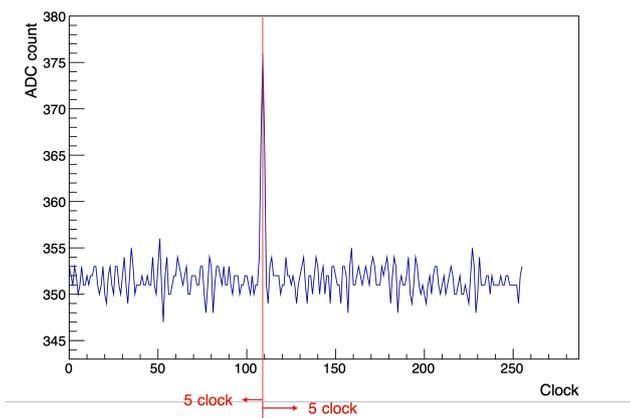


図 4.12 1 光電子の波形。横軸は clock で、1 clock=2 ns である。縦軸は ADC count 値である。

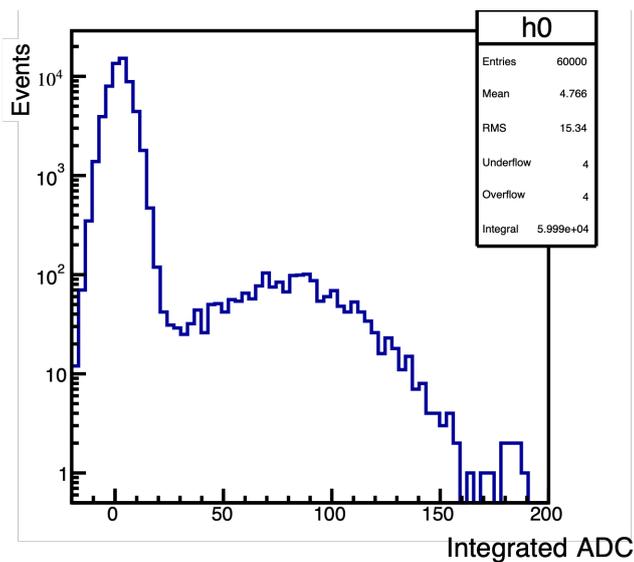


図 4.13 1 光電子の Integrated ADC 分布。横軸は Integrated ADC 値で、縦軸はイベント数である。

Pilot-U の測定を 5 回行い、1 光電子の測定と Pilot-U の測定は交互に行った。図 4.14 に 1 光電子の  $C_{p.e.}$  の結果を、図 4.15 に Pilot-U の光電吸収ピークの Integrated ADC 値 ( $C_{Pilot-U}$ ) の結果を示す。Pilot-U の  $C_{Pilot-U}$  は、 $C_{p.e.}$  と同様に光電吸収ピークをガウシアンでフィットして求めた。

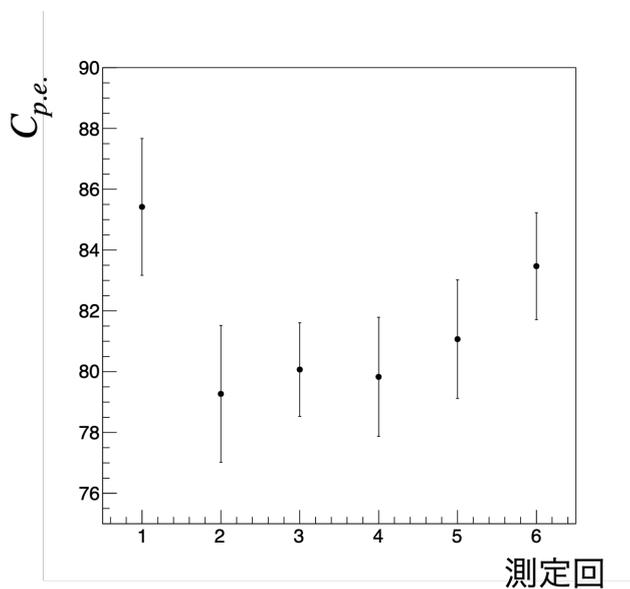


図 4.14 1 光電子の Integrated ADC 値

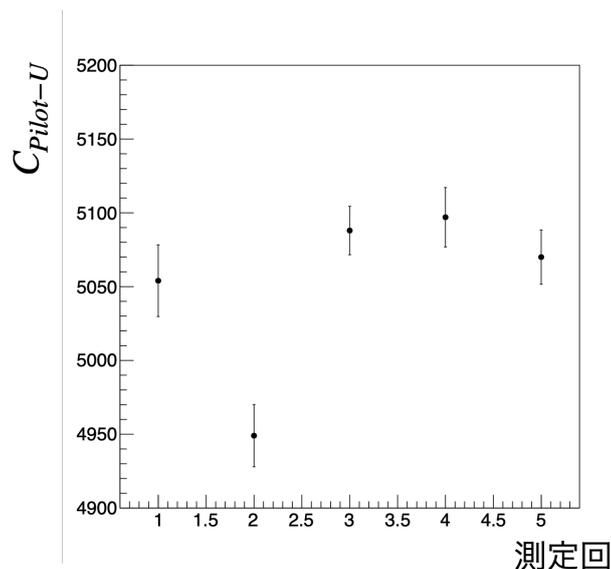


図 4.15 pilot-U の Integrated ADC 値

これらの結果を元に、59.5 keV に対応する Pilot-U の光電子数 ( $N_{p.e.}$ ) を求める。Pilot-U の光電子数  $N_{p.e.}$  は、測定前後の 1 光電子の Integrated ADC 値の平均  $C_{p.e.}$  と Pilot-U の Integrated ADC 値  $C_{Pilot-U}$  を用いて

$$N_{p.e.} [\text{p.e.}] = \frac{C_{Pilot-U} [\text{Integrated ADC}]}{C_{p.e.} [\text{Integrated ADC/p.e.}]} \quad (4.2)$$

で求めた。Pilot-U の 1 光電子較正の結果を図 4.16 に示す。図の縦軸は、 $N_{p.e.}$  で、横軸は測定回を表す。誤差は誤差伝播を用いて計算した。図の赤線は 5 回の結果を直線フィットしたものである。フィットのカイ 2 乗値の P 値は 0.44 より、フィットと測定結果は有意度 95% の範囲で一致する。従って、本研究における Pilot-U の光電子数  $N_{p.e.}^{Pilot-U}$  は、

$$N_{p.e.}^{Pilot-U} [\text{p.e.}] = (62.4 \pm 0.5) [\text{p.e.}] \quad (4.3)$$

である。4.1.3 項より、62.4 p.e. の時に見える光電吸収ピークは 59.5 keV のエネルギー損失に対応する。

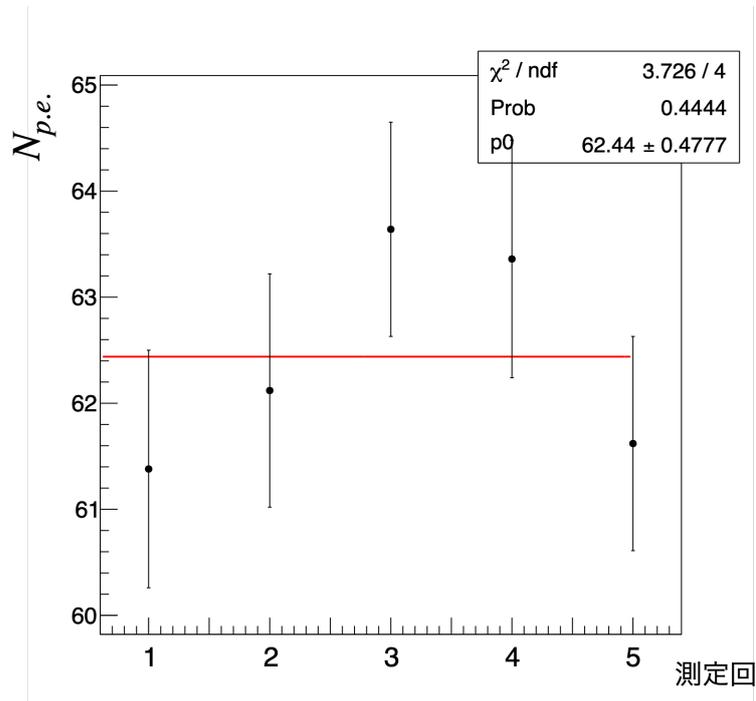


図 4.16 市販シンチレータ Pilot-U の光量。縦軸は Pilot-U の Integrated ADC 値を測定前後の 1 p.e. の Integrated ADC 値 (平均) で割った値である。横軸は測定回。今回は測定を 5 回行った。

## 第 5 章

# 発光特性の研究

本章では、UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの発光の特徴を調べるために、条件を変えてシンチレータを作った。変えた条件は以下の通りである。

- 紫外線照射時間
- 光重合開始剤の有無
- 窒素置換と真空脱気の有無

また、作成したシンチレータの光量を以下の手順で測る。

1. Pilot-U の光量を測る。
2. 作成したシンチレータの光量を測る。
3. Pilot-U の光量を測る。

測定中の PMT のゲイン変動を無視するために、シンチレータの光量 (Integrated ADC 値、 $C_{\text{Sample}}$ ) は、測定前後に行った Pilot-U の光量 (Integrated ADC 値、 $C_{\text{Pilot-U}}$ ) の平均との比  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$  で相対評価した。解析方法は、作成したシンチレータと Pilot-U の両方を 4.4.1 項で述べた方法で解析した。

### 5.1 再現性の評価

#### 5.1.1 測定方法の再現性

$^{241}\text{Am}$  を用いた測定の設定アップの再現性を確かめた。再現性を確かめるために市販のシンチレータ Pilot-U を用いた。線源とシンチレータは測定の度につけ外した。結果を図 5.1 に示す。横軸は測定回、縦軸は光電吸収ピークの Integrated ADC 値である。各点のばらつきを直線でフィットし、統計誤差の範囲内かどうか調べた (図中の赤線)。フィットで得たカイ 2 乗値の P 値は  $6 \times 10^{-6}$  になる。そのため、測定結果とフィットの値は合っていない。このセットアップには系統的不確かさがある。

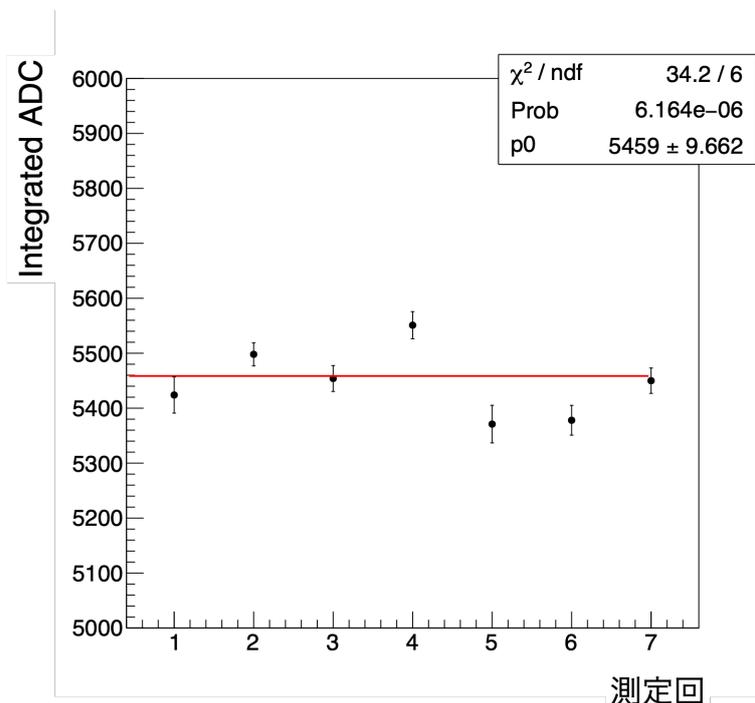


図 5.1  $^{241}\text{Am}$  を用いた実験のセットアップの再現性を確かめた。縦軸は Pilot-U の Integrated ADC 値である。7 回の測定を直線フィットした結果。各点のばらつきを直線でフィットし、統計誤差範囲内であるかを調べた。

系統的不確かさを求める。フィットで求めた値を平均値とし、7 点の不偏分散の平方根をとって標準偏差 54.58 を得た。本研究では  $1\sigma$  を系統的不確かさと考え、セットアップの系統誤差は  $\frac{54.58}{5459} \times 100 = 1\%$  の相対誤差として見積もる。

### 5.1.2 作成の再現性

別日にシンチレータを手順 1 から作り、同じ性能のものができかどうかを調べた。使ったシンチレータは DPO 濃度 20%、POPOP 濃度 0.41% である。作成したシンチレータの波形例を図 5.3 に示す。横軸は clock、縦軸は ADC count である。70 clock 付近にあるピークが作成したシンチレータ由来のパルスである。4.4.1 項と同じく、サンプリング波形の最初の 10 点の平均値をペダスタルとした。図 5.2 に波形のピークに対応した clock の分布を示す。横軸が clock で、縦軸がイベント数である。全てのイベントの波形のピークの時間は 50 clock から 100 clock の範囲内にある。そのため、波形のピークは 50 clock から 100 clock の範囲内で探した。作ったシンチレータの Integrated ADC 分布は、ADC count 値からペダスタルの値を引いたものを、ピークから前に 10 clock、後ろに 20 clock の範囲で足し合わせて作った。結果を図 5.4 に示す。横軸が作成したシンチレータの Integrated ADC 値、縦軸はイベント数である。 $C_{\text{Sample}}$  は、図中央にある光電吸収ピークをガウシアンでフィットして求めた。

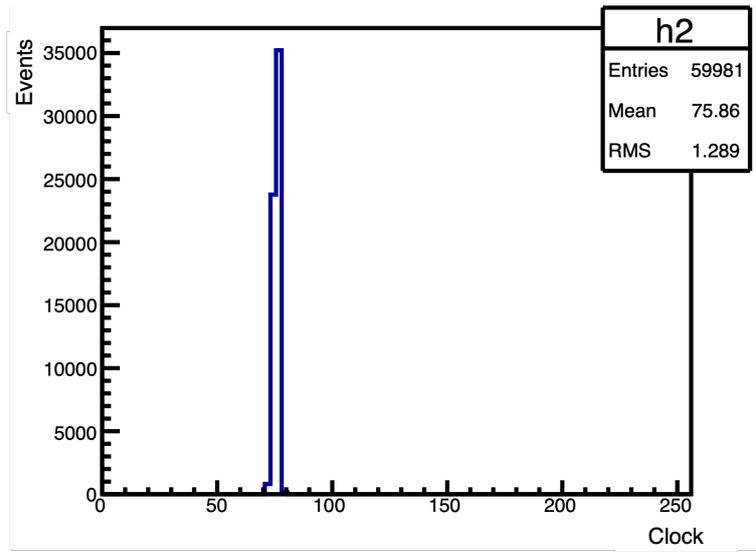


図 5.2 UV 硬化アクリル樹脂シンチレータのピーク対応した clock の分布。横軸は clock、縦軸はイベント数である。全てのイベントの波形のピークが 50 clock から 100 clock 内にあることがわかる。

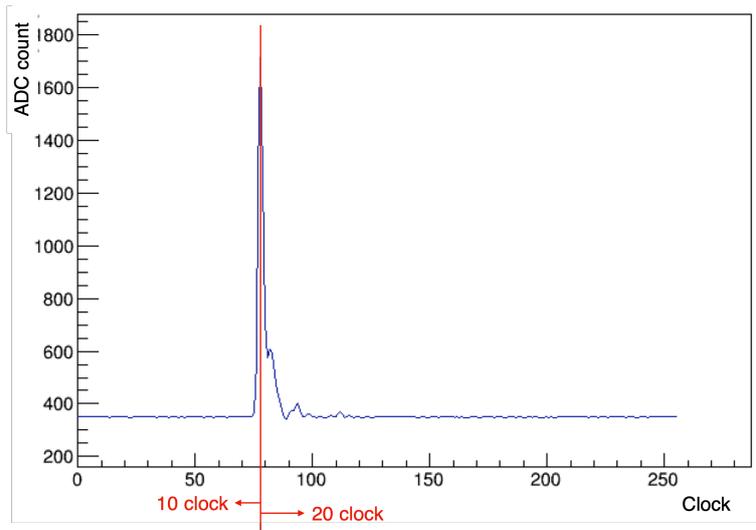


図 5.3 UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの波形

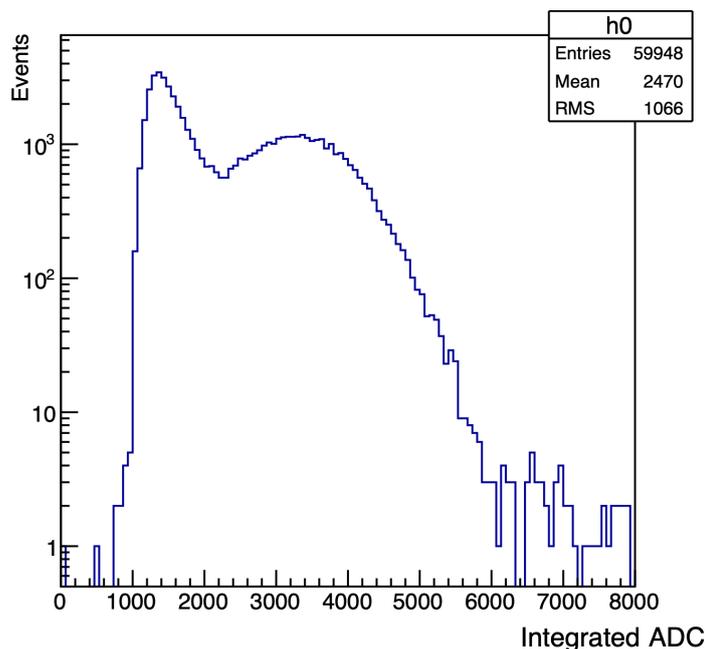


図 5.4 UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの Integrated ADC 分布

作成の再現性の結果を図 5.5 に示す。横軸は作成したシンチレータの日付に対応する。1 回目は 2024 年 11 月 28 日に作り、2 回目は 2024 年 12 月 29 日に作った。縦軸は、作ったシンチレータの Integrated ADC 値を測定前後の Pilot-U の Integrated ADC 値で割った値  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$  である。誤差は誤差伝播を用いて計算した。なお本研究では系統的不確かさが 1% あるため、作ったシンチレータの誤差を統計誤差と系統誤差の 2 乗和、Pilot-U の誤差を統計誤差と系統誤差の 2 乗和とした。

今回の測定結果は誤差の範囲内で一致している。第 3 章で述べた作成手法には再現性がある。

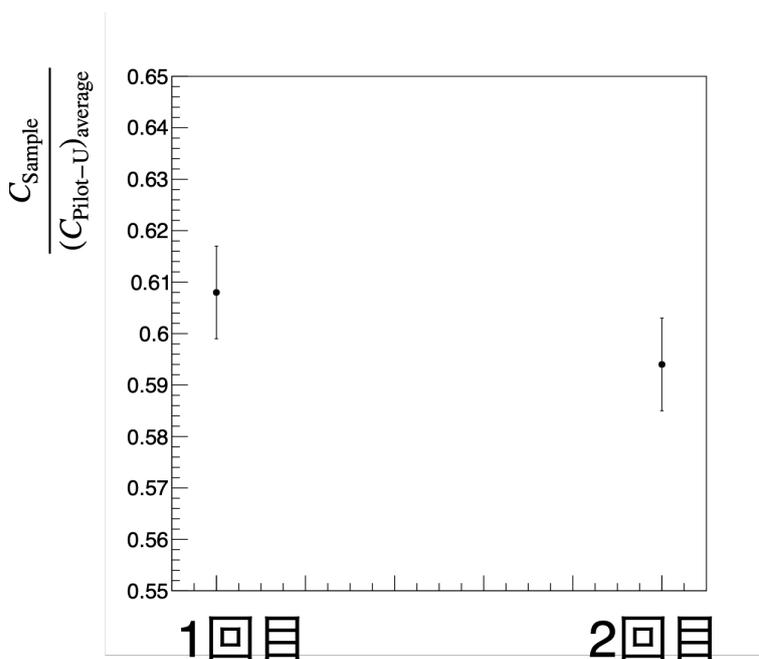


図 5.5 シンチレータ作成の再現性

## 5.2 作成からの日数と光量の関係

本章の研究をするにあたって、光量が数日で大幅に減るようなシンチレータならば、本章の研究は意味をなさない。そこで、本節では、2024 年 12 月 29 日に硬化させたシンチレータを、表 5.1 のように、1 日後と 13 日後に光量を測定し、比較した。結果を表 5.1 に示す。2024 年 12 月 30 日の相対光量と、2025 年 1 月 11 日の相対光量は一致した。この結果から、今回の作成手法で作ったシンチレータの光量は 2 週間では変わらないと言える。

表 5.1 作成からの時間経過における光量の変化

測定日	相対光量 $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$
2024 年 12 月 30 日	$0.594 \pm 0.003_{\text{stat.}}$
2025 年 1 月 11 日	$0.594 \pm 0.003_{\text{stat.}}$

## 5.3 紫外光照射時間の光量への影響

先行研究<sup>\*1</sup>では、UV 硬化樹脂のシンチレータは、紫外光を当てすぎると光量が落ちた [18]。紫外光の総照射時間と光量に関係があるのか次のように調べた。

1. DPO 濃度 20%、POPOP 濃度 0.41% の溶液を小瓶に入れて紫外光を照射する。
2. 小瓶に入れた液体の表面が固まったことを確認し、割って取り出す。
3. 取り出したシンチレータの光量を測定する
4. 光量を測定したシンチレータを UV ランプの下に戻し、1 時間紫外光をあてる。
5. 紫外光をあて終わったら、そのシンチレータの光量を測定する
6. 照射時間の合計が 8 時間まで、4 と 5 を繰り返す。

この方法で得られる結果は、紫外光の総照射時間にのみ関係する。作ったシンチレータは、紫外光照射時間 3 時間で表面は固まった。しかし、ビンの底の部分は柔らかく、固まりきっていなかった。そのため、このシンチレータは測定に用いなかった。別途新しい液体を 4 時間紫外光を照射し、硬化させた。紫外光を 4 時間照射したシンチレータは底の面も固まっていた。そのため、本研究では 4 時間から 1 時間ごと紫外光を照射し、光量を調べた。結果を図 5.6 に示す。縦軸は本章の冒頭で述べた  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$ 、横軸は紫外光の総照射時間である。

次に、得られた結果の有意差を下の式を用いて調べた。

$$\frac{|A - B|}{\sqrt{(\sigma_A)^2 + (\sigma_B)^2}} \quad (5.1)$$

A、B は  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$  で、 $\sigma_A$ 、 $\sigma_B$  は A、B の誤差である。本研究では、差のばらつきの大きさが  $2\sqrt{(\sigma_A)^2 + (\sigma_B)^2} = 2\sigma$  以上 (確率 5% 未満) ならば統計誤差の範囲内でないとする。この考えをもとに図 5.6 の結果を次のように解釈した。なお、総照射時間 4 時間から 7 時間の 4 点の測定値のばらつきは、カイ 2 乗の P 値が  $9 \times 10^{-5}$  であり 4 点は一定ではない。

- 総照射時間 4 時間と 5 時間は有意差がある。
- 総照射時間 4 時間と 8 時間は有意差がある。

<sup>\*1</sup> アクリレートモノマー M-211B(ビスフェノール AEO 変性ジアクリレート)を用いた研究。蛍光剤と波長変換剤は本研究と同じである。

- 総照射時間 5 時間と 6 時間は有意差がある。
- 総照射時間 6 時間と 7 時間に有意差はない。

従って、この結果から、総照射時間 4 時間のシンチレータはモノマーの重合が不十分であったが、5 時間で重合が完了したため光量が上がったと考えた。8 時間で光量が落ちたのは、紫外光による性能劣化であると考えた。本研究では、5.5 節、5.6 節、5.7 説で用いるシンチレータは 5 時間で作ったものを用いた\*2。

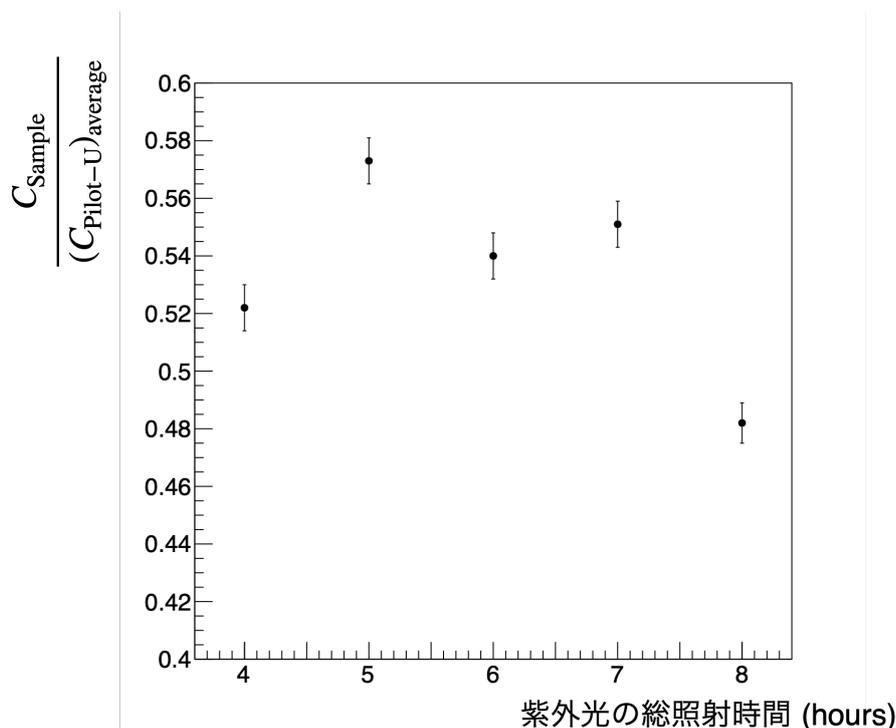


図 5.6 紫外光照射時間と光量の関係

## 5.4 光重合開始剤が発光機構に与える影響

本研究では第 3 章で述べた 3 種類の光重合開始剤の光量への影響を調べた。光重合開始剤を加えたベースの溶液は、DPO 濃度 20%、POPOP 濃度 0.41% である。溶液へ加える量は、Omnirad 184 と Omnirad TPO-L は薬品の使用用途に書いてある推奨値 3wt% と 5wt% にした。Omnirad TPO-N は推奨値がなかったため、先行研究\*3[18]の値を参考に決定した。加えた量を表 5.2 に示す。蛍光剤と異なり、加えた量は、作った溶液全体に対する割合で示している。

表 5.2 溶液に加えた光重合開始剤の量

光重合開始剤の種類	溶液に加えた量 (wt%)
Omnirad TPO-L	5
Omnirad 184	3
Omnirad TPO-N	0.02

\*2 光重合開始剤を用いた実験はこの限りではない。

\*3 先行研究で用いている Irgacure TPO は、本研究で用いた Omnirad TPO-N の前身である。

Omnirad TPO-L を加えた溶液は、紫外光照射時間 5 分で固まった。しかし、Am を用いたセットアップでは、PMT からの出力波形が小さく、光電吸収ピークを確認することができなかった。そのため線源  $^{137}\text{Cs}$  を用いて  $^{137}\text{Cs}$  の 662 keV のガンマ線によるコンプトン端が現れる位置を確認した。結果を図 5.7 に示す。横軸 Integrated ADC 値、縦軸イベント数である。662 keV のガンマ線がつくるコンプトン端はおよそ 475 keV であるから、60 keV のガンマ線の光電吸収ピークはおよそ 8 分の 1 の場所にあると考えることができる。この結果から、Omnirad TPO-L はシンチレータの発光を阻害すると考えた。

Omnirad 184 を加えた溶液は紫外光の照射時間が 2 時間未満だと固まらなかった。2 時間で固まったものを、取り出して測定した。測定結果を図 5.8 に示す。横軸 Integrated ADC 値、縦軸イベント数である。2000 Integrated ADC 付近の分布が光電吸収ピークである。しかし、コンプトン効果との境目がはっきりせずピーク部分がコンプトン効果による連続分布に埋もれている。これは 4.1.3 節で示した光量 10 p.e. の時の分布に近い。そのため、光電吸収ピークをフィットしても 59.5 keV に対応しないと考え、相対光量は求めなかった。またこの測定結果より、Omnirad 184 は、Omnirad TPO-L ほどではないが、発光を阻害すると考えた。

Omnirad TPO-N を加えて作った溶液を紫外光照射時間 2 時間で硬化させた。紫外光照射時間を 2 時間に決めたのは、Omnirad 184 と同じ条件にするためである。取り出したシンチレータの測定結果を図 5.9 に示す。光電吸収ピークが確認でき、コンプトン効果による連続分布との境目もはっきりしている。この時の相対光量は  $0.619 \pm 0.009$  である。光重合開始剤を加えていないシンチレータの相対光量は  $0.608 \pm 0.009$  なので、Omnirad TPO-N は発光を阻害しない。

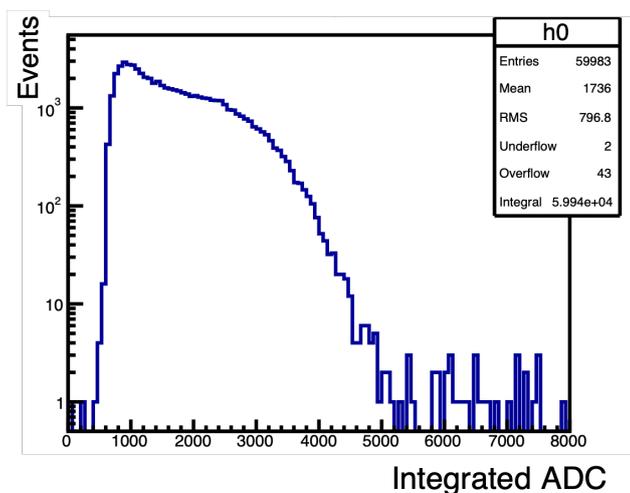


図 5.7 光重合開始剤 Omnirad TPO-L を加えたシンチレータの Integrated ADC 分布。線源  $^{137}\text{Cs}$  を用いて測定した。

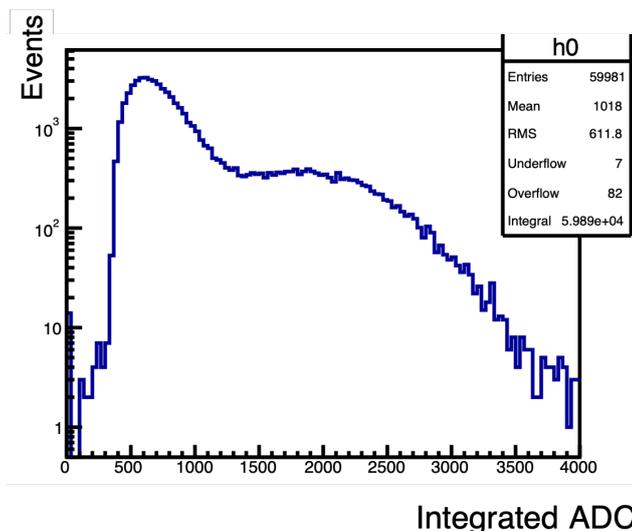


図 5.8 光重合開始剤 Omnirad 184 を加えたシンチレータの Integrated ADC 分布

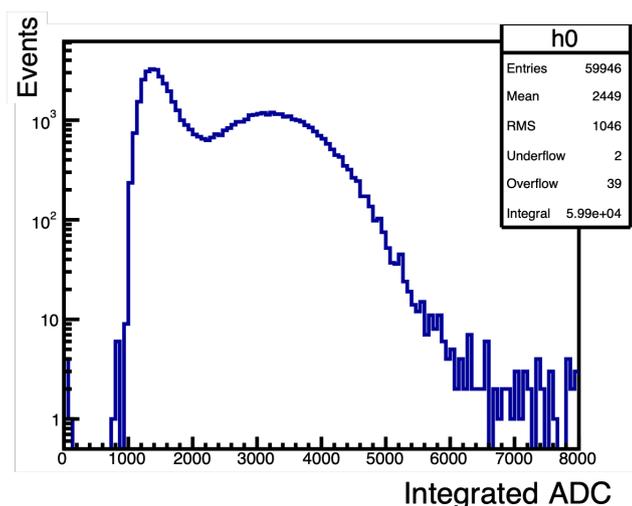


図 5.9 光重合開始剤 Omnirad TPO-N を加えたシンチレータの Integrated ADC 分布

これらの結果から、光重合開始剤は、Omnirad TPO-N を用いるのが良い。しかし、溶液へ加えた量が Omnirad TPO-N と他の 2 種類とでは大きく異なる。そのため、Omnirad 184 や Omnirad TPO-L でも Omnirad TPO-N と同じ値 (0.02wt%) を用いれば光量が上がると考えた。この仮説を Omnirad TPO-L を用いて確かめた。Omnirad 184 は硬化に 2 時間かかったため、質量濃度を減らせば 2 時間で硬化しないと考えて確かめなかった。

図 5.10 に Omnirad TPO-L を 0.02wt% 加えて作ったシンチレータの Integrated ADC 分布を示す。紫外光の照射時間は、Omnirad TPO-N と条件を揃えるために 2 時間とした。図の横軸は Integrated ADC 値、縦軸はイベント数である。先述した濃度から 0.02wt% まで下げると、 $^{241}\text{Am}$  で光電吸収ピークを確認することができた。このことから、発光の阻害には光重合開始剤の濃度が関係していることがわかる。

図 5.11 に Omnirad TPO-N と Omnirad TPO-L、そして光重合開始剤を何も入れていないシンチレータ (紫外線照射時間 5 時間) の光量比較を載せる。Omnirad TPO-L と Omnirad TPO-N、そして光重合開始剤を加えていないシンチレータに有意な差はない。従って、本研究で用いた光重合開始剤の中では、Omnirad TPO-L と Omnirad TPO-N が UV 硬化アクリル樹脂シンチレータに適している。また、光重合開始剤の有無については、入

れたほうが良い。その理由は、光重合開始剤なしのシンチレータは全体的に柔らかく、脆いが、光重合開始剤を加えたシンチレータは固く、強度があり、実用化に向いているからである。光重合開始剤と発光の関係については第 7 章でさらに考察する。

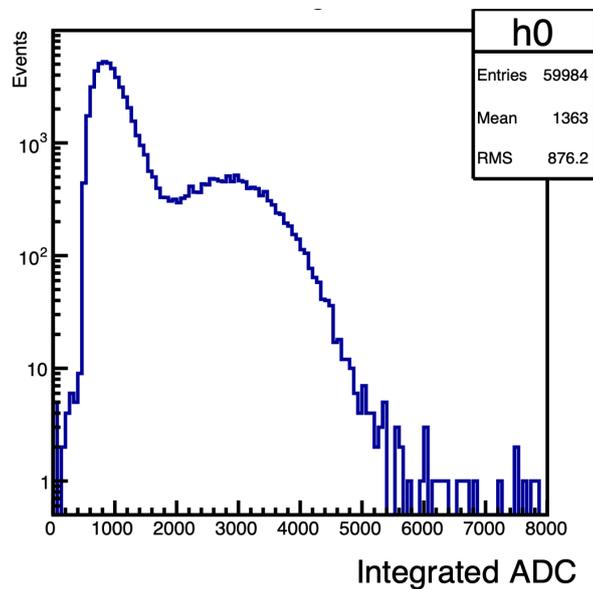


図 5.10 Omnirad TPO-L のシンチレータの Integrated ADC 分布

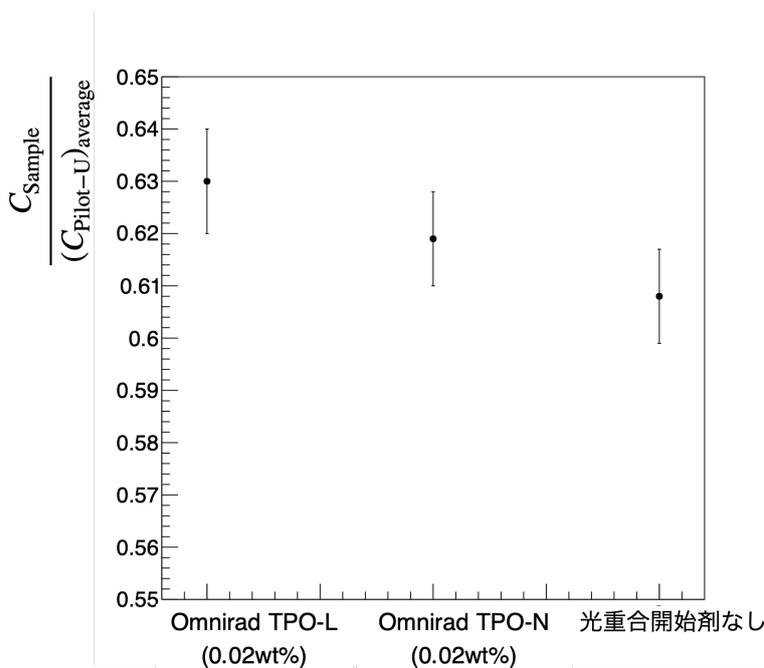


図 5.11 Omnirad TPO-L と Omnirad TPO-N を重量パーセント濃度 0.02 で加えたシンチレータと光重合開始剤を加えていないシンチレータの光量比較

## 5.5 窒素置換と真空脱気が光量へ与える影響

本節では、作った溶液を窒素置換した場合と真空脱気が光量へ与える影響について述べる。一般的に、液体やプラスチックシンチレータ内に酸素が溶け込んでいると、酸素消光と言われる光量の減衰が起きる ([9])。そこで、本研究では (1) 窒素置換や真空脱気をしない場合、(2) 窒素置換せずに油回転真空ポンプを用いて-0.1 MPa 以下で真空脱気した場合、(3) 窒素缶 (純度 95% と 99.9%) で置換した場合とで光量に差が出るのか調べた。なお、窒素置換すると溶液中に泡が大量に発生するため、真空脱気をしてから硬化した。

窒素置換には理科実験用の 5 l の窒素ガス缶を用いた。用いた窒素ガスは、ケニス株式会社の純度 95%(残りの 5% は空気<sup>\*4</sup>) とジーエルサイエンス社の純度 99.9% である。純度の異なる 2 種類の窒素ガスを用いることで、窒素純度による違いがあるのかも調べた。

北村化学産業株式会社の角田耀氏から、UV 硬化する際は窒素置換を行うことを推奨された。その理由は、溶質を混ぜる際に酸素が入ると硬化が上手く進まないためである。しかし、本研究では硬化したことは確認したが、その品質については確認していない。

本節の研究で用いたシンチレータは以下の手順で作った。

1. 大きなビンに DPO 濃度 20%、POPOP 濃度 0.41% の溶液を作り、4 つの小ビンに分ける。
2. 4 つの小ビンのうち、1 つはすぐに硬化させる。(=窒素置換や真空脱気をしないシンチレータ)
3. 残り 3 つの小ビンのうち、2 つに対して窒素置換を行う。窒素置換はそれぞれ 95% と 99.9% の窒素ガスで行う。
4. 窒素置換が終わったら、3 つをまとめて真空脱気する。

溶液に加える窒素ガスの量は定量しておらず、以下のように溶液の様子を目視して決めた。加える量の目安は、溶液中に窒素の泡が大量にできるまでであり、窒素ガスの噴出時間ではおよそ 1 分から 2 分程度である。使用後の窒素缶には、窒素の残量があったため、使用量は 5 l 未満である。置換に用いた窒素ガスの量による影響があるかもしれないため、本節の研究では上記のシンチレータを 2 セット作った。

真空脱気に用いたセットアップの全体図を図 5.12 に示す。中央にあるクリアボックス内に小ビンを置いて真空脱気した。また真空脱気している様子を図 5.13 に示す。真空度合いが高くなると、溶存している気体が図のように泡として出てくる。真空脱気は、この泡が目視で確認できなくなるまで行った。脱気を行った時間は概ね 2、3 時間である。

<sup>\*4</sup> 純度 99% の窒素ガスボンベから窒素缶に充填する際に空気が混入するため。



図 5.12 真空脱気に用いたセットアップ。

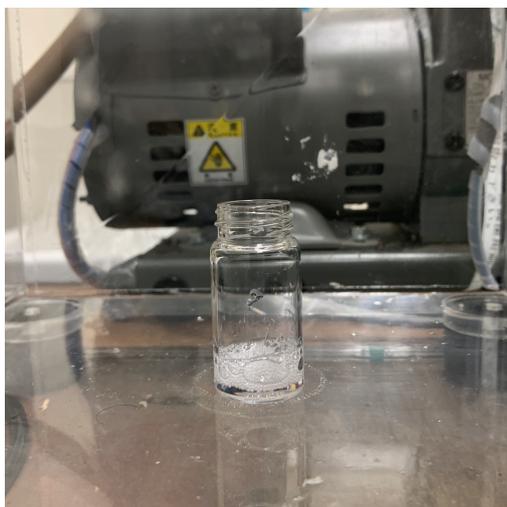


図 5.13 油回転ポンプを用いて真空脱気している様子。

結果を図 5.14 に示す。横軸はシンチレータを作成するときの条件、縦軸は Pilot-U との光量の比  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$  である。黒い点がセット 1、赤い点がセット 2 の測定結果である。赤枠で囲った 2 点が真空脱気と光量の関係を示し、青枠で囲った 3 点は窒素の有無と光量の関係を調べた結果である。赤枠内の比較より、真空脱気の有無は光量に影響しない。一方で、青枠内の窒素置換ありとなしでは、窒素置換ありの方が有意に光量が高い。この傾向は 2 つのセットで再現している。従って、窒素置換の有無による光量の変化は、先述した酸素消光が起きたためだと考えた。また、真空脱気の有無では光量に有意な差が出なかったため、真空脱気では酸素を取り除くには不十分だと考えた。セット 1 とセット 2 では、窒素ガスの純度 95% と純度 99.9% の光量が有意に異なる。再現しなかった原因は加えた窒素ガスの量の違いにあると考え、追実験を行った。

追実験では下記の 4 種類の溶液を作った。溶液の硬化は、真空脱気をした後に行った。

1. 窒素ガスの純度 95% を 5 l 加えた溶液。
2. 窒素ガスの純度 99.9% を 5 l 加えた溶液。
3. 窒素ガスの純度 95% を 10 l 加えた溶液。
4. 窒素ガスの純度 99.9% を 10 l 加えた溶液。

結果を図 5.15 に示す。横軸はシンチレータに加えた窒素ガスの種類と量、縦軸は Pilot-U との光量の比  $\frac{C_{Sample}}{(C_{Pilot-U})_{average}}$  である。窒素ガスを 5 l 加えた場合、窒素ガスの純度 95% の光量と 99.9% の光量は  $2.5\sigma$  離れており有意差がある。しかし、10l 加えた場合は、窒素ガスの純度による有意差はない。また、窒素ガス純度 95% では、加えた量による有意差があるが、純度 99.9% では有意差はない。このことから、窒素ガスの純度が高ければ置換に必要な量は少なくてもいいと考えた。しかし、図 5.14 で示したセット 2 の窒素ガス純度 95% の結果 (相対光量 0.8) は再現しなかった。そのため、窒素の量以外の要因が関係していると考えられるが、この原因についてはわからなかった。

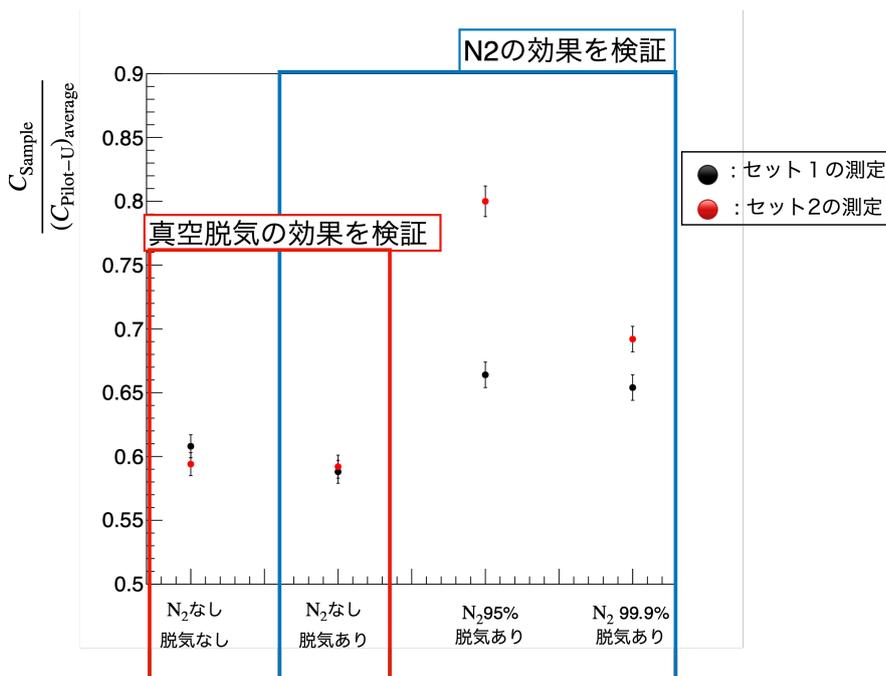


図 5.14 窒素置換と真空脱気と光量の関係。図の赤枠で囲った 2 点は、真空脱気の効果を検証した結果である。青枠で囲った 3 点は窒素置換の効果を検証した結果である。

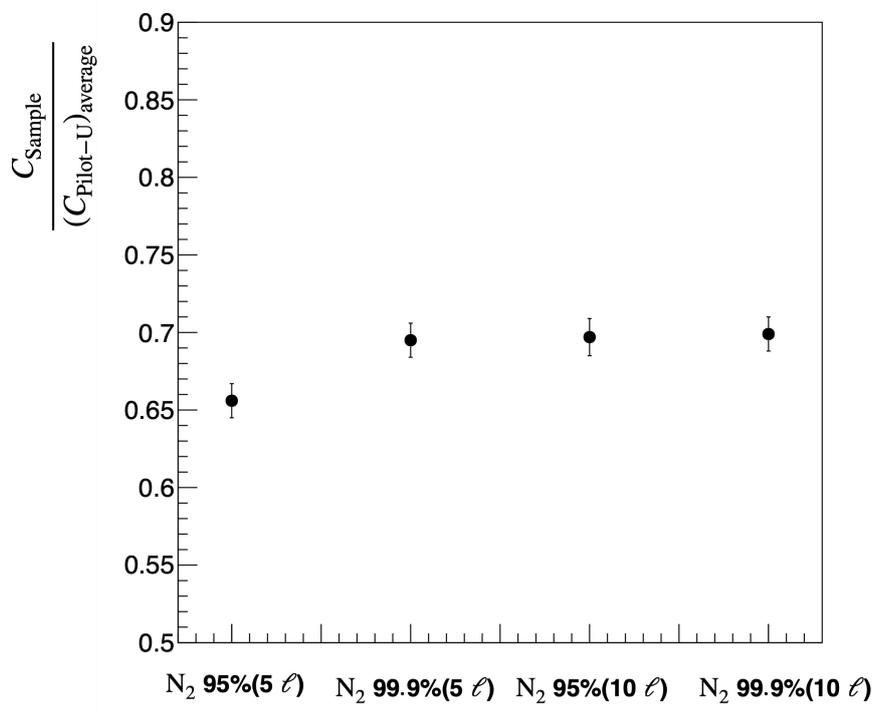


図 5.15 窒素ガスの量と光量の関係。横軸は窒素置換に用いた窒素ガスの種類と加えた量である。

## 5.6 蛍光剤の濃度依存性

蛍光剤の濃度と光量に相関があるのか調べた。過去に DPO 濃度が 20% と 30% のシンチレータ<sup>\*5</sup>を作ったところ、DPO 濃度 30% のシンチレータだけ、作成して 1 週間後に白い粉が析出した。白い粉の正体を知るために、大阪大学大学院理学研究科技術部分析機器測定室の伊藤彰厚氏と川村和司氏へ依頼分析をし、DPO が析出していることがわかった。そのため、本研究で用いた EBECRYL-150 に対する DPO の飽和濃度は 20% から 30% の間にある。この経験を踏まえて、本研究では飽和しない 20% でシンチレータを作り、その発光特性を調べた。しかし、先行研究<sup>\*6</sup>では DPO 濃度が 30wt% のシンチレータなど、本研究よりも DPO 濃度の高いシンチレータを作っており、光量も市販品と同程度にある。そこで、本研究で用いている EBECRYL-150 のモノマーでも飽和濃度を超えても光量上がるのかを確かめた。作ったシンチレータは、DPO 濃度 10%、20%、30% と 40% であり、窒素置換や真空脱気せずに作った。また、それぞれの DPO 濃度における POPOP の割合は、DPO に対してモル比 8 分の 1 の量である。

結果を図 5.16 に示す。横軸は DPO 濃度、縦軸は  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$  である。DPO 濃度 10% と DPO 濃度 20% では光量が 1.5 倍になっているが、DPO 濃度 20% と 30%、30% と 40% 間では 1.1 倍で、10% と 20% の間ほど光量の増加はない。この結果より、飽和濃度を超えて蛍光剤を加えても光量は増加することがわかった。ただし、作成後 1 週間程度で溶けきれなかった DPO 由来の白い結晶が析出し始めるため、結晶が析出しても光量が同じかどうかを調べた。白い粉状の結晶の析出は、シンチレータの表面だけでなく内部にも出るため、濁ったシンチレータになる。この析出具合は時間の経過とともに増える。結果を図 5.17 に示す。横軸が DPO 濃度、縦軸が  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$

\*5 POPOP の割合は、どちらも DPO に対してモル比で 8 分の 1 である

\*6 アクリレートモノマー M-211B(ビスフェノール AEO 変性ジアクリレート)を用いた研究。蛍光剤と波長変換剤は本研究と同じである。

である。1 回目の測定が黒い点、2 回目の測定が赤い点である。2 回目の測定の際に粉が析出したシンチレータを用いた。シンチレータの光量はどちらも有意に下がっていることが確認できた。また、1 回目の測定では DPO 濃度 30% と 40% は光量に有意差があったが、2 回目の測定では有意差はない。さらに図 5.16 の結果と比較すると、2 回目の測定で得られた光量は、DPO 濃度 20% より有意に低い。これらの結果から、DPO 結晶が粉として析出し始めると光量が下がることが確認できた。この結果から、結晶があると基材から DPO もしくは DPO から POPOP へのエネルギー移行が阻害される可能性と、結晶があることで光の透過が悪くなった可能性が考えられる。なお、粉が析出しない DPO 濃度 20% 以下は 5.2 節の結果より、2 週間程度で光量は変わらないことが確かめられているので測定していない。

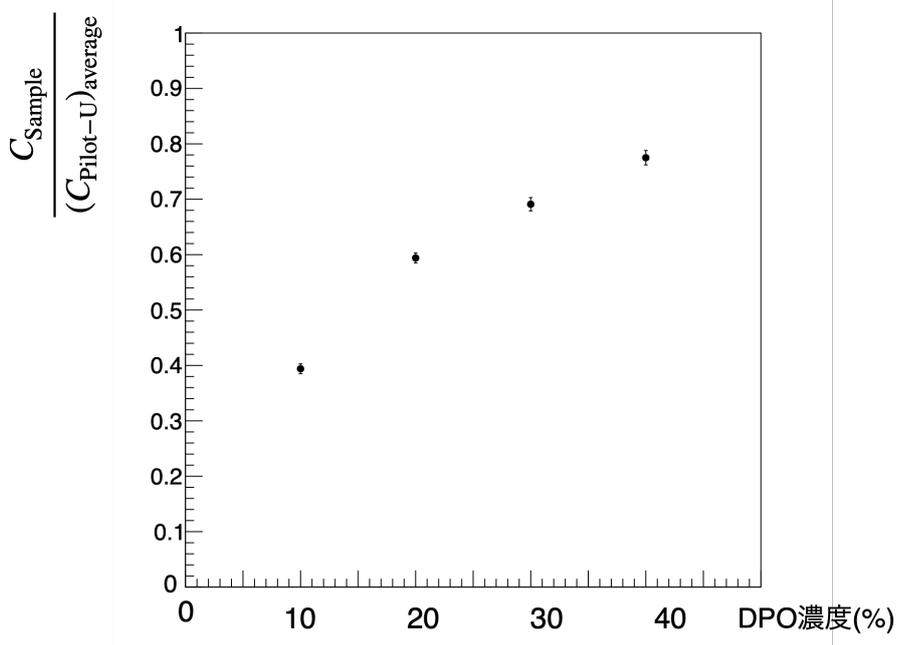


図 5.16 EBECRYL-150 に対する DPO 濃度と光量の関係

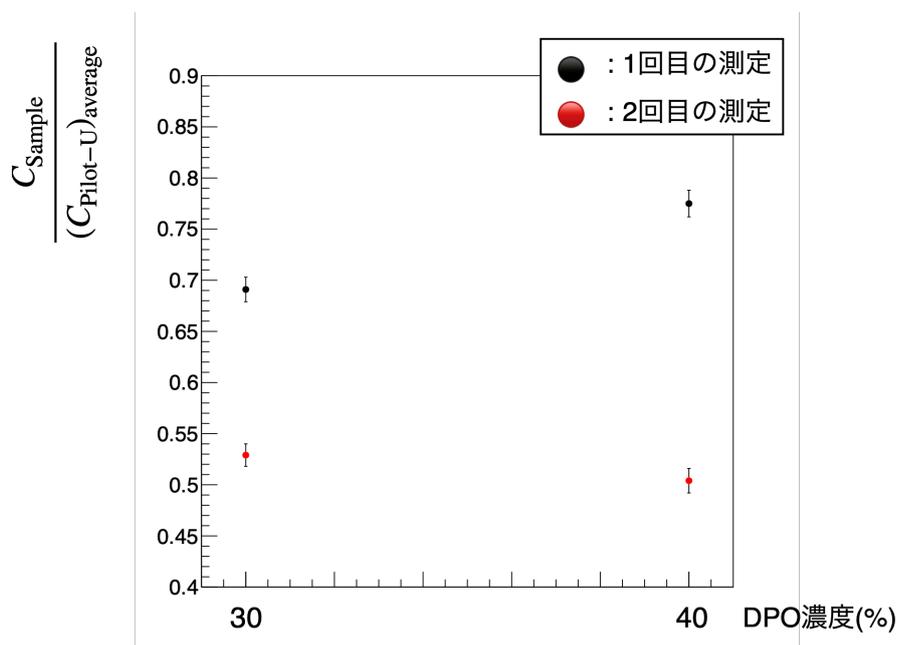


図 5.17 基材に対する DPO 濃度と光量の関係

## 5.7 蛍光剤と波長変換剤の混合割合

本研究では先行研究を参考に DPO と POPOP の混合割合を 80:1 で固定していた。しかし、波長変換剤の割合を多くすればより光量上がるのではないかと考え、調べた。今回は DPO20% の溶液で、POPOP の加える割合を変えて光量の変化を見た。窒素置換と真空脱気はしていない。結果を図 5.18 に示す。横軸は DPO と POPOP のモル比での混合割合、縦軸は第 6 章で述べた Pilot-U との光量の比  $\frac{C_{\text{Sample}}}{(C_{\text{Pilot-U}})_{\text{average}}}$  である。DPO と POPOP のモル比での混合割合が 80:1 で光量が有意に高い。40:1 と 160:1 に有意な差はない。この結果から、波長変換剤の割合を増やしても光量は増えず、蛍光剤による発光量を最大限引き出す値があることがわかった。

今回調べた混合割合において、DPO20% の溶液では DPO と POPOP の混合割合は 80:1 で適切であることが確かめられた。しかし、DPO30% や DPO40% など、溶液中の DPO 濃度が増えた時でも POPOP の割合が 80:1 で適切かは調べておらず、今後の課題である。

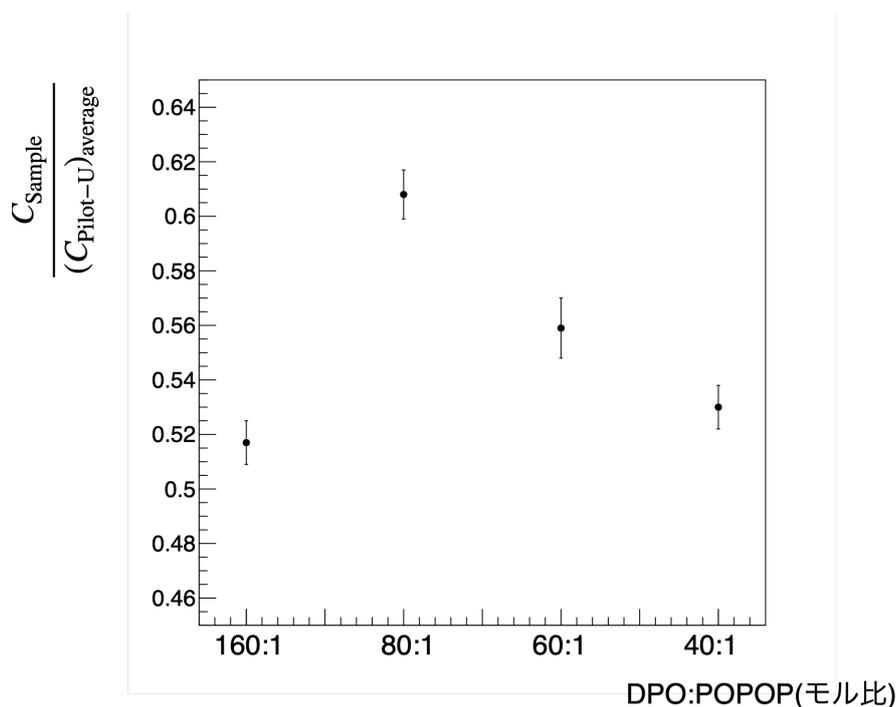


図 5.18 DPO と POPOP の混合割合。

## 5.8 シンチレータの光量比較

前章で述べた Pilot-U の光量は  $62.4 \pm 0.5$  p.e. である。この光量が妥当であるかを確かめるために、プラスチックシンチレータの性質から予想される光量 (計算値) と比較した。比較した結果、計算値と前章で述べた光量は一致しなかった。そのため別のプラスチックシンチレータ (サンゴバン社製 BC404) の光量を測定した。また、本章の測定で用いたシンチレータの 1 MeV のエネルギー損失あたりの光電子数を求めた。

### 5.8.1 Pilot-U の光量の検証

4.4.3 節では、Pilot-U を用いて 59.5 keV あたりの光量の測定した。Pilot-U の光量は、光電子数換算で  $(62.4 \pm 0.5)$  p.e. である。一般的なプラスチックシンチレータでは 100 eV のエネルギーで 1 光電子が出る。 $^{241}\text{Am}$  の 59.5 keV に相当する光電子数を下記の (5.2) 式の計算で見積もった。なお、式中の 0.9 はシンチレータをテフロンテープでまいた効果を見積もった値である。テフロンテープは波長 400 nm から 800 nm で反射率 0.9 であることからこの値にした。0.25 は PMT の量子効率 [28] である。

$$\frac{59.5 \times 10^3 \text{ eV}}{100 \text{ eV}} \times 0.9 \times 0.25 = 133.8 \text{ p.e.} \quad (5.2)$$

この計算結果から、一般的なプラスチックシンチレータでは 130 p.e. 程度の光量が出るのがわかる。しかし、Pilot-U の値は計算値と大きく異なる。この理由は Pilot-U の蛍光波長ピークが波長 391 nm であるからだと考えた。そこで別のプラスチックシンチレータ、サンゴバン社製の BC404 (蛍光波長ピーク 408 nm、減衰時間 1.8 ns) の光量を求めることにした。

### 5.8.2 BC404 の光量

サンゴバン社製の BC404 の光量を求める。光量の求め方は、本章で述べた測定方法と同じである。測定結果を図 5.19 に示す。

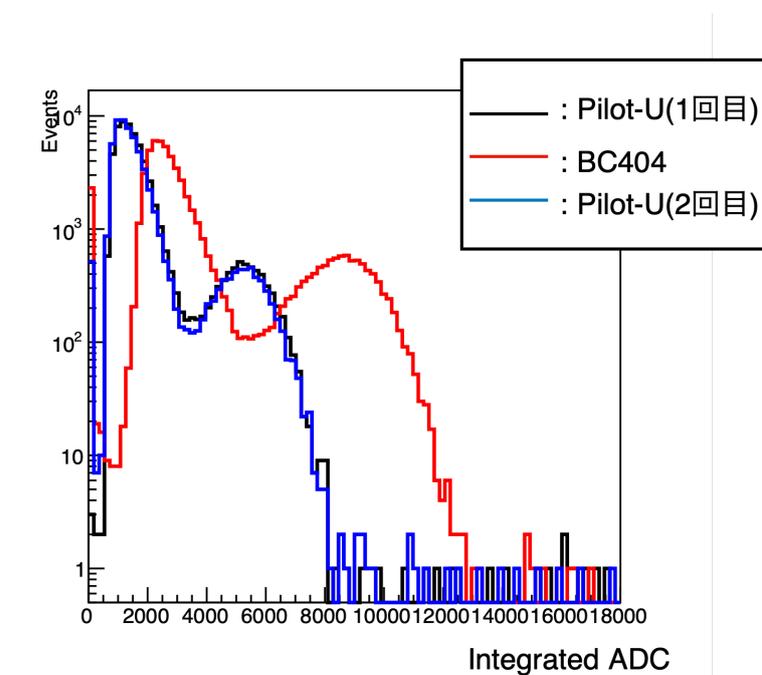


図 5.19 BC404 と Pilot-U の Integrated ADC 分布

この測定で BC404 の相対光量は  $1.632 \pm 0.006_{\text{stat}}$  である。Pilot-U の光電子数 ( $62.4 \pm 0.5$ ) p.e より、BC404 の光電子数は  $62.4 \text{ p.e.} \times 1.63 = 101.7 \text{ p.e.}$  である。この値は、式 (7.1) の概算値より 30 p.e. 程低いが、シリコンクッキーによる光量のロスや本研究のセットアップがもつ系統的不確かさの影響によるものだと考えられる。

### 5.8.3 本章の測定で用いたシンチレータの光量比較

本章の測定に使ったシンチレータの光量を求めた。計算方法は上記と同じである。結果を表 5.3 に示す。複数回の測定をした結果は、最も良い値を記した。ただし、DPO 濃度 30% と 40% は 2 回目の測定値を最終結果とした。特に注意書きしていないものは紫外光照射時間 5 時間、真空脱気と窒素置換なしで作ったシンチレータである。

表 5.3 シンチレータ中の 59.5 keV のエネルギー損失あたりの光量比較

シンチレータ	光量 ( $\frac{[p.e.]}{59.5 \text{ keV}}$ )
DPO10%	24.3
DPO20%	37.9
DPO30%	33.0
DPO40%	31.4
DPO20%(真空脱気なし、窒素置換なし)	37.9
DPO20%(真空脱気あり、窒素置換なし)	36.9
DPO20%(真空脱気あり、窒素置換あり (95%))	49.9
DPO20%(真空脱気なし、窒素置換あり (99.9%))	43.2
DPO20%(紫外線照射時間 4 時間)	32.6
DPO20%(紫外線照射時間 6 時間)	33.7
DPO20%(紫外線照射時間 7 時間)	34.4
DPO20%(紫外線照射時間 8 時間)	30.1
DPO20%(Omnirad TPO-N)	38.6
DPO20%(Omnirad TPO-L)	39.3
Pilot-U	62.4
BC404	101.7

次にこの値を用いて、一般的に広く用いられている 1 MeV のエネルギー損失あたりの光電子数を求めた。結果を表 5.4 と図 5.20 に示す。

表 5.4 シンチレータ中の 1 MeV のエネルギー損失あたりの光量比較

シンチレータ	光量 ( $\frac{[p.e.]}{1 \text{ MeV}}$ )
DPO10%	408
DPO20%	637
DPO30%	555
DPO40%	528
DPO20%(真空脱気なし、窒素置換なし)	637
DPO20%(真空脱気あり、窒素置換なし)	620
DPO20%(真空脱気あり、窒素置換あり (95%))	839
DPO20%(真空脱気なし、窒素置換あり (99.9%))	726
DPO20%(紫外線照射時間 4 時間)	548
DPO20%(紫外線照射時間 6 時間)	566
DPO20%(紫外線照射時間 7 時間)	578
DPO20%(紫外線照射時間 8 時間)	506
DPO20%(Omnirad TPO-N)	649
DPO20%(Omnirad TPO-L)	661
Pilot-U	1049
BC404	1710

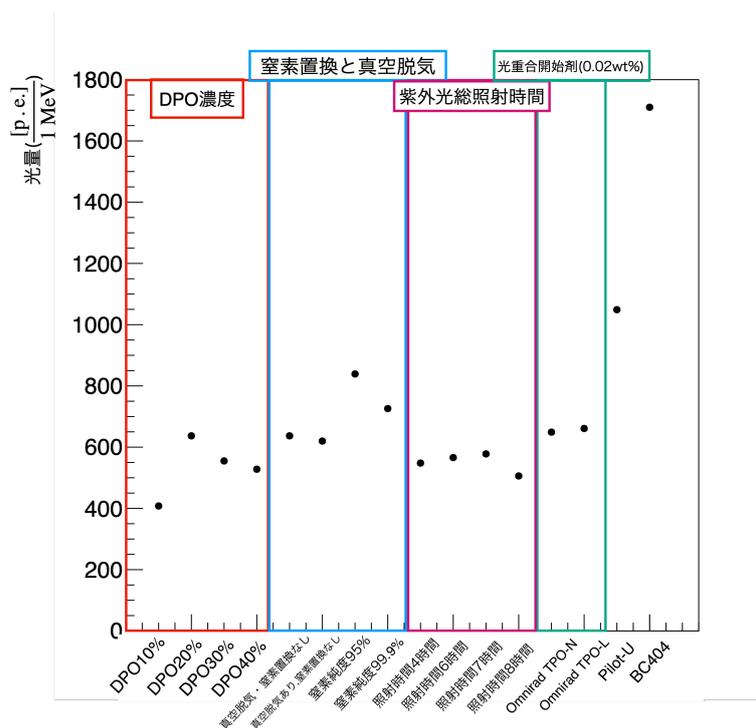


図 5.20 シンチレータ中の 1 MeV のエネルギー損失あたりの光電子数

本研究で得られた最大獲得光量はシンチレータ中の 1 MeV のエネルギー損失あたり 839 光電子数である。これは、サンゴバン社製のシンチレータ BC404 との相対比較で 0.49 倍である。

## 5.9 蛍光の減衰時間

シンチレータの性能を表す指標の 1 つに蛍光の減衰時間がある。KOTO II 実験では BC404 より高速応答なシンチレータを導入したい。そこで、本研究で作った UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの減衰時間を BC404 と比較した。

減衰時間の評価は波形を比較して行った。比較する波形は、BC404 の波形と、DPO20%、POPOP 濃度 0.41% (窒素置換、真空脱気なし。紫外光照射時間 5 時間) のシンチレータの波形である。用いた波形データはそれぞれ 1000 イベントである。本研究ではサンプリング周波数 500 MHz の ADC を用いてデータを取得した。そのため、サンプル点の最大値が実際の波形の最大値と一致するとは限らない。そこで、各イベントの波形の最大値とその前後のサンプル点が放物線上に並ぶと仮定し、真の最大値と最大となる時間を求めた。求めた真の最大値を用いて各イベントの波高を規格化し、最大となる時間を揃えて、重ね書きしてプロットを作った。作成したプロットを図 5.21 と図 5.22 に示す。図 5.21 が BC404、図 5.22 が DPO20% の UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの波形である。波形の最大値の位置を 0 ns に固定して 1000 イベント重ね書きした。リングングがあるため、正確に減衰時間を見積もることはできない。そのため、図 5.21 と図 5.22 を重ね書きして評価した。サンプル点が多いため、0.5 ns ごとに y 軸の平均とエラーを計算した図を重ね書きした。作成した図を図 5.23 に示す。図の青いプロットが BC404、赤いプロットが DPO20% の UV 硬化アクリル樹脂シンチレータである。今回は波形の最大値を 0 ns に固定しているため、波形が立ち上がる時間は同じではない。BC404 の波形の立ち上がり時間は 0.7 ns であることを考慮すると、波形の立ち上がりは波形取得用の ADC のアナログ入力パートの応答によるものであると考えた。そこで、

立ち上がり時間が  $2\text{ ns}^{*7}$  の NIM モジュールの clock generator の出力波形と BC404 の波形と比較した。結果を図 5.24 に示す。青色のプロットが BC404、赤色のプロットが NIM モジュール出力であり、両者の立ち上がり時間には大差がないことがわかる。また、 $2\text{ ns}$  で立ち上がっていた NIM モジュールの波形が、 $6\text{ ns}$  程度に変わっていることから、波形の立ち上がりは ADC のアナログ入力パートの応答によるものである。次に、蛍光の減衰に着目する。図 5.23 より、BC404 と DPO20% に有意差はない。BC404 の減衰時間は  $1.8\text{ ns}$  であることを考慮すると、減衰にも ADC のアナログ入力パートの応答による効果があると考えられる。従って、KOTO 実験で使っているものと同等性能の ADC を使う限りでは、BC404 と UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの減衰時間には差が出ないことがわかった。

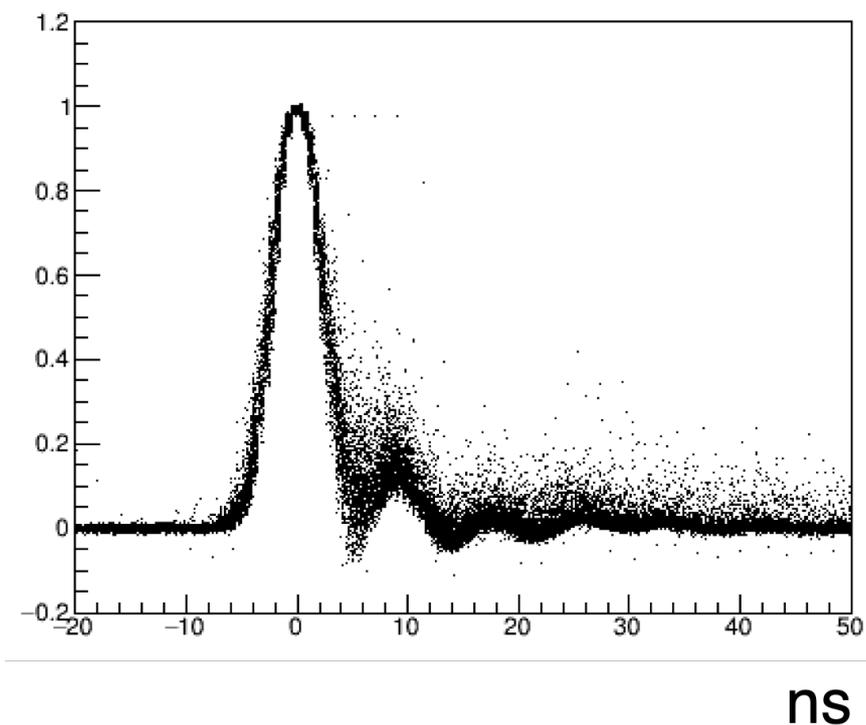


図 5.21 BC404 の蛍光減衰時間。波高を規格化し、ピークの位置を  $0\text{ ns}$  に固定して重ね書きした。

<sup>\*7</sup>  $500\text{ MHz}$  帯域のオシロスコープを用いて目視で確認した。

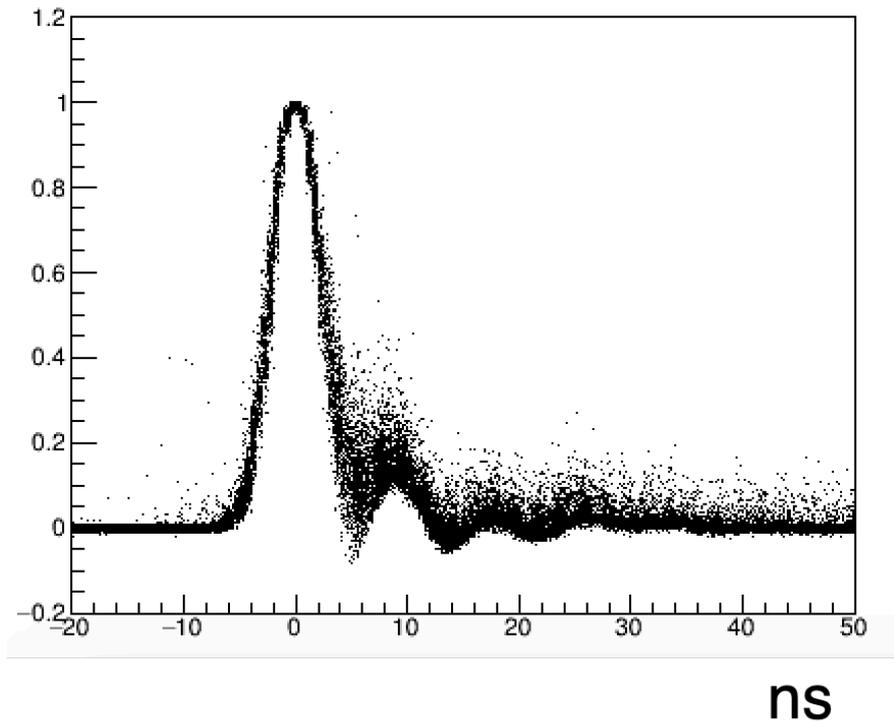


図 5.22 DPO20 %の UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの蛍光減衰時間。波形の高さを規格化して重ね書きした。

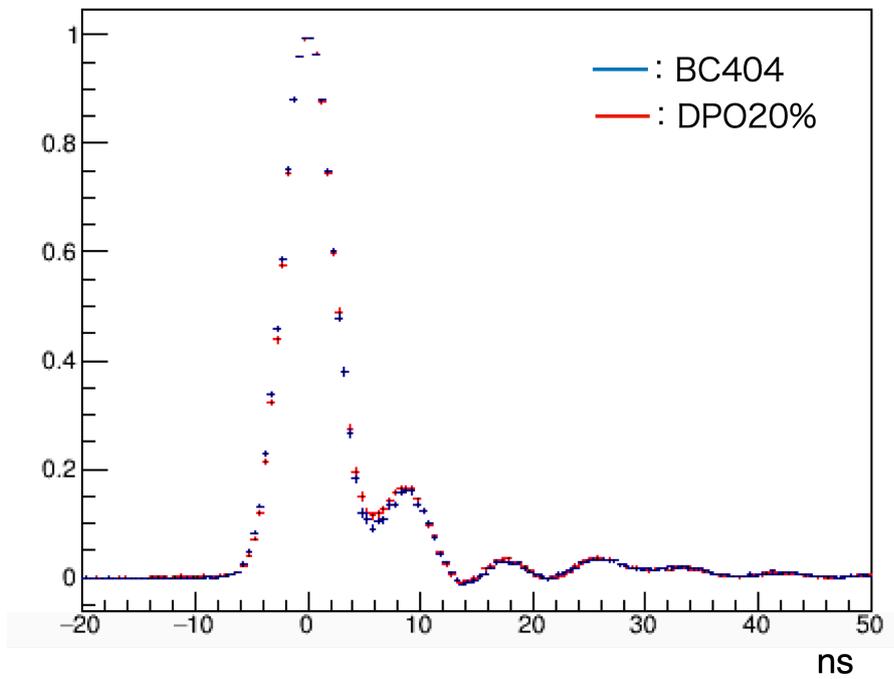


図 5.23 BC404 と DPO20% の蛍光減衰時間。それぞれの規格化した波形を、横軸 0.5 ns ごとに y 軸の平均とエラーを計算した。青いプロットが BC404、赤いプロットが DPO20% である。

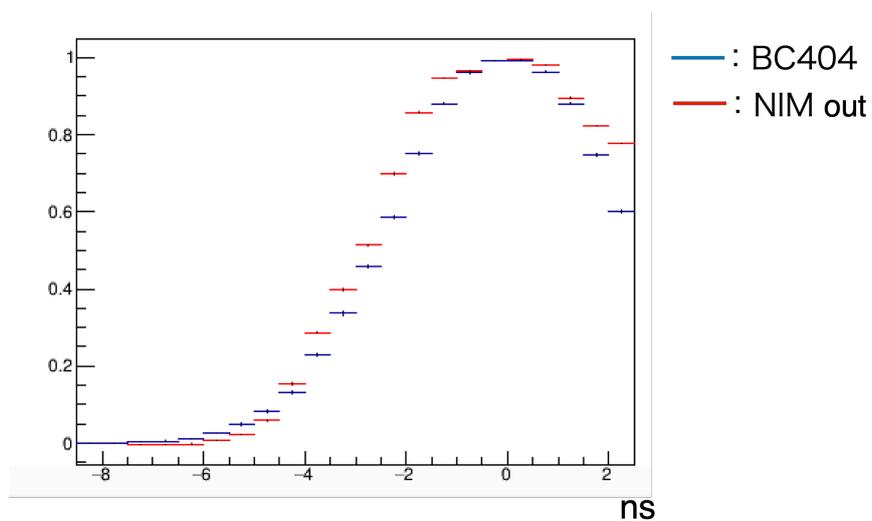


図 5.24 BC404 の波形と NIM モジュールの clock generator の出力波形の比較。それぞれの規格化した波形を、横軸 0.5 ns ごとに y 軸の平均とエラーを計算した。青いプロットが BC404、赤いプロットが clock generator である。

## 第 6 章

# 本研究に用いた基剤の蛍光・励起スペクトル

本研究では、PVT や PS ベースのシンチレータと同じ光量が出ると期待してベンゼン環をもった基剤を選定した。しかし、第 5 章で述べた結果より、光量は市販品に及ばなかった。そのため、硬化したシンチレータでベンゼン環が機能しているかを調べるために基剤の蛍光・励起スペクトルを測定した。また、市販の亚克力板で蛍光スペクトルに違いがあるのかも調べた。

### 6.1 測定原理

この節では、物質の蛍光、励起スペクトルの測定原理を述べる。

蛍光、励起スペクトルは物質に光を当てて得る。光の入射によりエネルギーを受け取った分子<sup>\*1</sup>は、一時的に励起状態に遷移し、基底状態に戻るときに光を出す。本研究では、作成するシンチレータの蛍光ピーク波長を知るために分光蛍光光度計を用いて蛍光、励起スペクトルの測定を行った。

図 6.1 に分光蛍光光度計の概念図を示す。光源は Xe ランプである。Xe ランプから出た光は励起側のモノクロメータに入射する。モノクロメータでは、光源から単色光を取り出す。実際には、単色とはいえ、取り出される波長には幅がある。この幅のことをバンド幅という。バンド幅は図 6.2 のように、取り出す波長の半値全幅により定義される。モノクロメータから出た光はビームスプリッターを通り、2 つに分けられる。分けられた光は、励起波長をモニターする励起モニターと試料室に照射する光路に送られ、試料を照らす。

試料から出た蛍光は、蛍光側のモノクロメータで分光され、蛍光強度のスペクトルを得る。蛍光強度の値は、蛍光側の検出器の値をそのまま用いるのではなく、励起光強度で割り算した値を用いる。この方法により、光源のふらつきや、光源や励起側の分光器の波長特性などを無視できる。

蛍光、励起スペクトルの取得方法を次に記す。蛍光スペクトルは、励起波長を固定して、蛍光の波長を走査して得る。蛍光スペクトルは、蛍光が出る波長より短波長の励起波長ならば、蛍光スペクトルの形は励起波長に大きくよらない ([29])。蛍光スペクトルからは試料の蛍光ピークが分かる。励起スペクトルは、蛍光波長を固定し、励起光の波長を走査して得る。一般的に固定する蛍光波長は蛍光波長ピークであり、本研究でも蛍光波長ピークに固定した。これにより、蛍光波長ピークを出す時の励起波長の形が分かる。

---

\*1 正確には分子を構成する電子のこと。

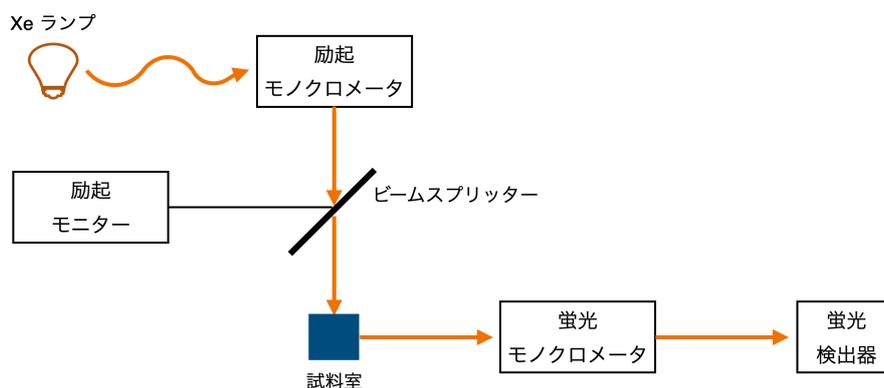


図 6.1 分光蛍光光度計の構成の概念図

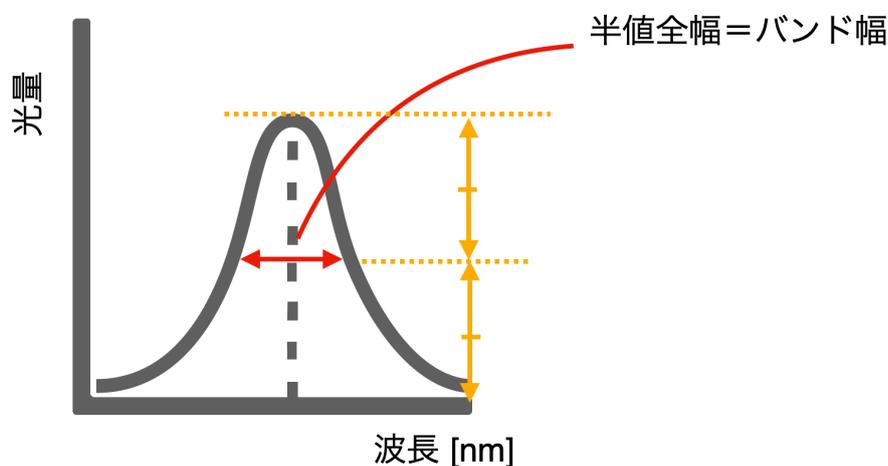


図 6.2 バンド幅の概念図

## 6.2 測定方法

日本分光の分光蛍光光度計 FP-8500 を用いて蛍光・励起スペクトルを測定した。FP-8500 は、波長範囲が 200 nm から 850nm であり、分解能が 1 nm である。本研究では、市販の亚克力板 (10 mm 厚) と比較するために、EBECRYL-150 のモノマーを硬化させた樹脂を使った。また、蛍光・励起スペクトルが硬化によって変わるのかを調べるために、EBECRYL-150 の液体の状態も測定した。

測定の様子を図 6.3 に示す。図中の赤矢印は試料に照射する励起光を表し、青矢印は試料から出てくる蛍光を表す。図 6.3(a) は液体の試料を測定するときのセットアップである。測りたい試料を四面透過の石英ガラスセルに入れて測定した。石英ガラスセルは、写真中央にあるセルホルダーに置いた。図 6.3(b) は固体の試料を測定するときのセットアップである。写真中央にある固体専用の固定ホルダーに置き、測定した。

励起波長を  $x$  nm とした場合の測定手順は次の通りである。

1. 励起波長を  $x$  nm に固定し、 $(x+50)$  nm から任意の波長まで蛍光側の波長を測定する。
2. 蛍光スペクトルの分布を確認し、蛍光波長ピークを調べる。
3. 固定する蛍光波長の値を蛍光波長ピーク値に設定する。設定した蛍光波長を  $y$  nm とすると、任意の波長から  $(y-50)$  nm まで励起側の波長を測定する。

蛍光、励起のバンド幅は 10 nm で測定を行った。測定の結果を 6.3 節に示す。

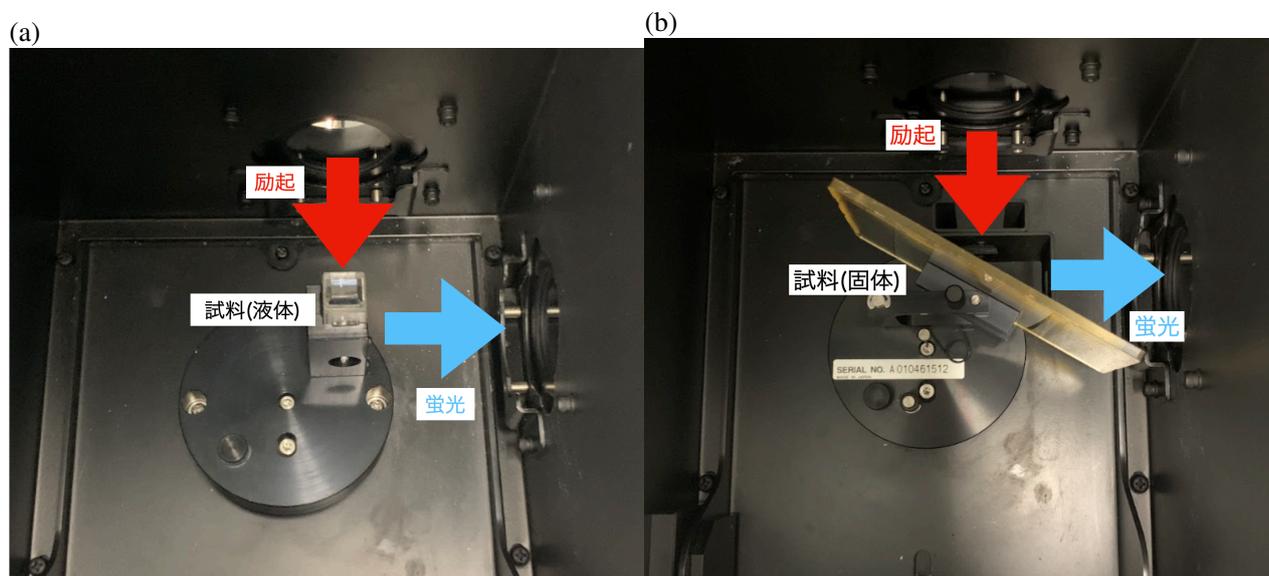


図 6.3 (a)(b) 共に分光器を上からのぞいて撮った写真である。(a) 液体の試料の測定。写真中央に液体を入れるセルがある。液体を入れたセルをここに固定することでスペクトルが測定できる。(b) 固体の試料測定。写真中央にある固定ホルダーに試料を挟むとスペクトルが測定できる。

### 6.3 測定結果

本節では得られたデータの特徴について述べる。結果の考察は 6.4 節で行う。

本研究で用いたアクリレートモノマー、EBECRYL-150 の液体と固体のスペクトルを図 6.4 と図 6.5 に示す。また図 6.6 に市販のアクリル板のスペクトルを示す。それぞれの測定における蛍光スペクトルの測定に用いた励起波長、励起スペクトルを測定するとき用いた蛍光波長は表 6.1 の通りである。固体の測定では、励起波長を分光器の照射可能な最短波長 200 nm で蛍光スペクトルを測った。蛍光波長は、蛍光スペクトルの結果から決めた。EBECRYL-150 の液体の測定でも、固体と同じ励起波長 200 nm を用いた。また、励起波長の測定では、原則固定する蛍光波長の 50 nm 手前まで測定する。これは、固定する蛍光波長のテールによる影響をなくすためである。しかし、本試料に関しては、蛍光波長のテールの影響が 10 nm 手前までなかったため、250 nm から 390 nm の範囲で測定した。蛍光波長は、蛍光スペクトルの結果をもとに最大蛍光強度のピークをとる値にした。

表 6.1 アクリレートモノマーと市販のアクリル板の蛍光・励起スペクトル測定に用いた波長

試料名	励起波長 (nm)	蛍光波長 (nm)
EBECRYL-150(液体)	200	400
EBECRYL-150(固体)	200	290
市販のアクリル板	200	290

図 6.4 より、EBECRYL-150 の液体の蛍光波長ピークは 400 nm にある。この 400 nm の蛍光は、200 nm の励起による。励起スペクトルより 400 nm の蛍光には 310 nm から 390 nm の波長の吸収が対応する。しかし、硬化させた EBECRYL-150 の蛍光波長ピークは、200 nm の励起で 290 nm と 360 nm にある。これらのピークに対応する励起波長は 200 nm から 250 nm に分布する。この特徴は、市販のアクリル板でも同じである。これらの結果

については次節でさらに議論する。

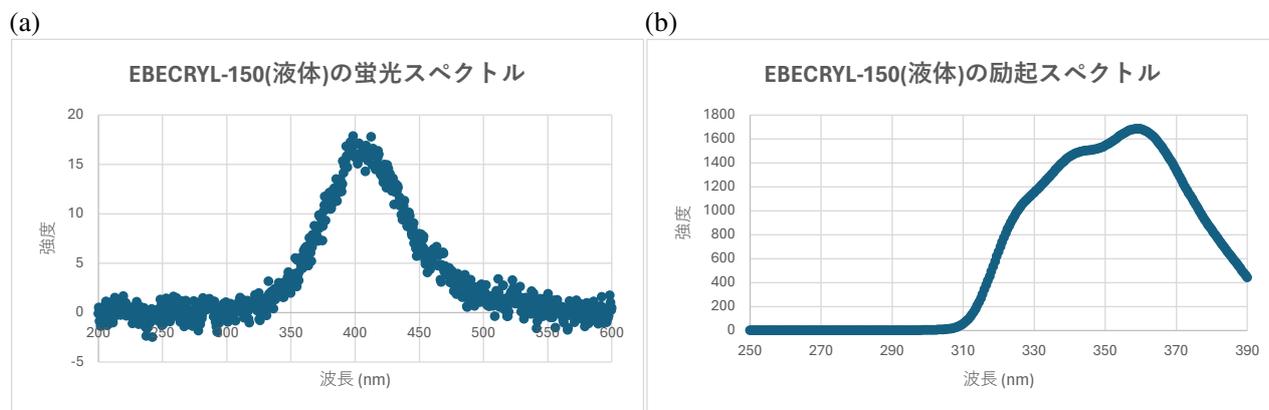


図 6.4 EBECRYL-150(液体) の蛍光・励起スペクトルである。(a) 蛍光スペクトル (b) 励起スペクトル

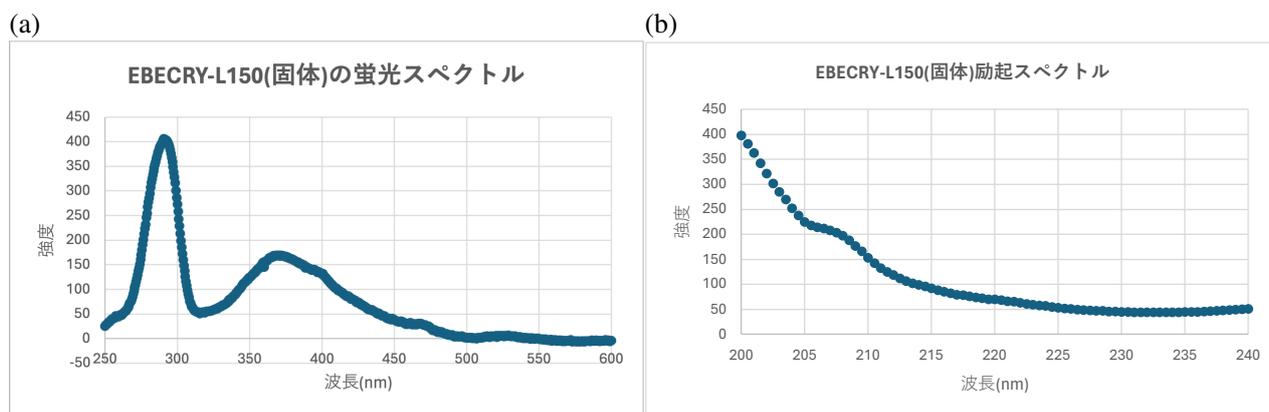


図 6.5 EBECRYL-150(固体) の蛍光・励起スペクトルである。(a) 蛍光スペクトル (b) 励起スペクトル

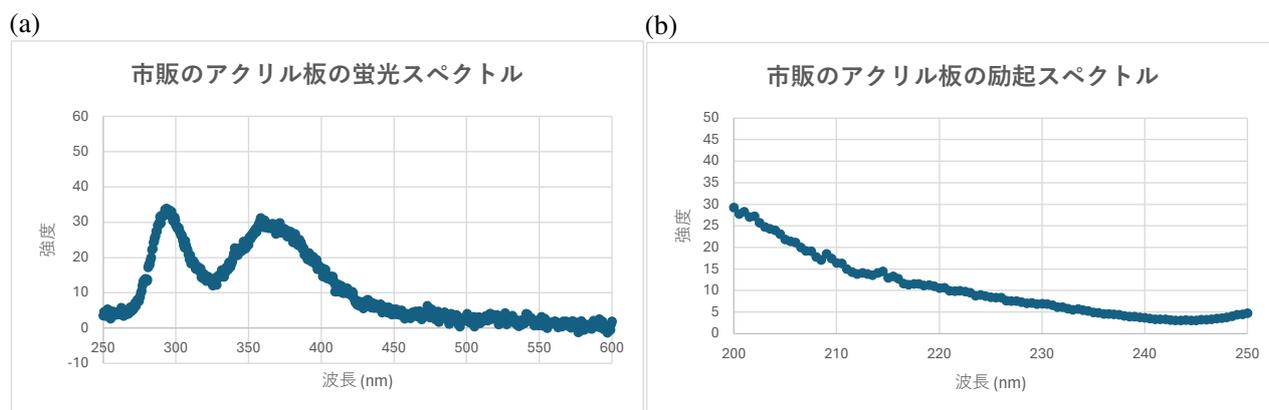


図 6.6 市販のアクリル板 (固体) の蛍光・励起スペクトルである。(a) 蛍光スペクトル (b) 励起スペクトル

この結果を踏まえて、表 6.2 に示す励起波長で蛍光スペクトルを測った。この励起波長を選んだ理由は、EBECRYL-150(液体) の蛍光波長をはっきりと見るためである。また、固体の 2 種類についても、励起波長 320 nm で 400 nm 付近の蛍光が見えるのか確かめた。

表 6.2 アクリレートモノマーと市販のアクリル板の蛍光・励起スペクトル測定に用いた波長

試料名	励起波長 (nm)
EBECRYL-150(液体)	320
EBECRYL-150(固体)	320
市販のアクリル板	320

結果を図 6.7、6.8、6.9 に示す。図 6.7 が EBECRYL-150(液体)、図 6.8 が EBECRYL-150(固体)、図 6.9 が市販のアクリル板である。

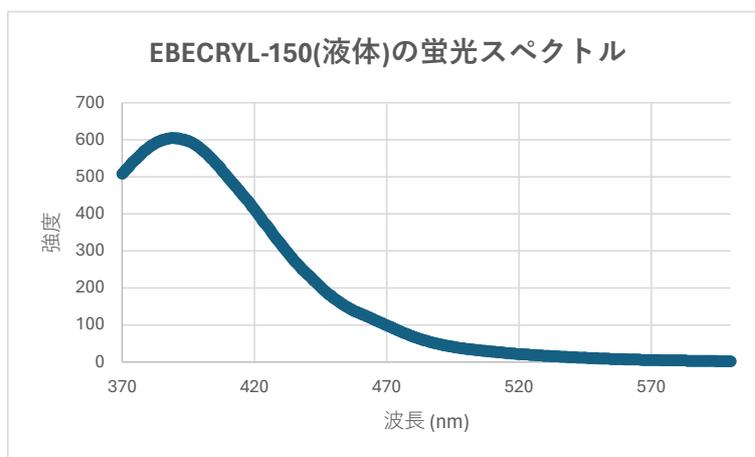


図 6.7 励起波長 320 nm の時の EBECRYL-150(液体) の蛍光スペクトル

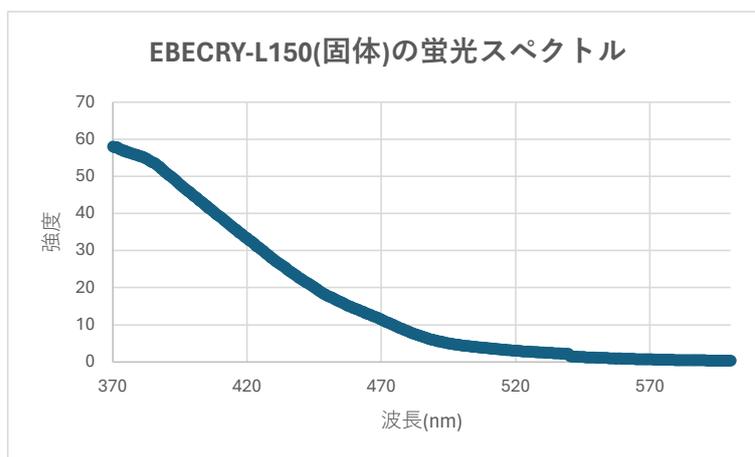


図 6.8 励起波長 320 nm の時の EBECRYL-150(固体) の蛍光スペクトル

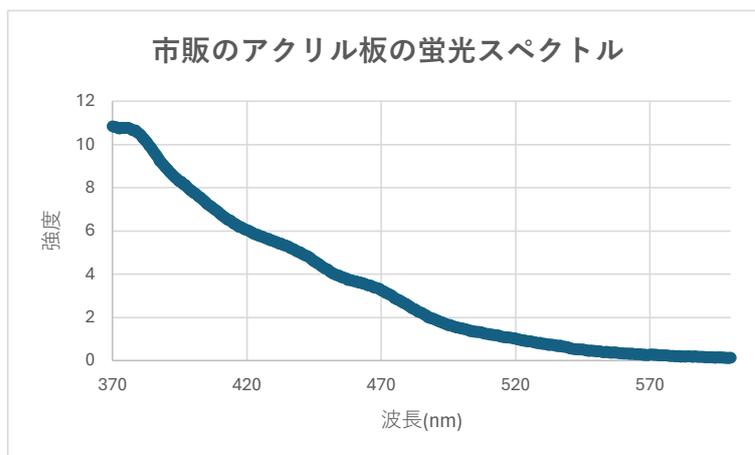


図 6.9 励起波長 320 nm の時の市販のアクリル板の蛍光スペクトル

図 6.8 と図 6.9 より、固体の 2 種類では短波長側に向かって蛍光強度が上がっていることがわかる。EBECRYL-150 の液体では、400 nm に図 6.4 よりも蛍光強度が高くなった蛍光波長ピークを確認できた。

#### 6.4 蛍光・励起スペクトル測定の結果の考察

EBECRYL-150 は液体と固体で、蛍光・励起スペクトルが変わった。これは、モノマーの状態と重合した固体とで性質が変わることを示している。硬化して樹脂になった状態では、スペクトルで市販のアクリル板との大きな違いはなかった。樹脂になった状態では低波長側 (290 nm と 310 nm 付近) に蛍光のピークが確認できる。蛍光ピークの最大蛍光強度は、最大励起波長 200 nm の光の入射において 400(EBECRYL-150) と 30(市販のアクリル板) であり、市販のアクリル板に比べて低波長の蛍光強度が高いことがわかる。

一方で、液体の状態では 400 nm に蛍光ピークがある\*2。励起波長を 320 nm に変えて再測定した結果から、固体では 400 nm の蛍光がほぼ出ないことがわかる。また最大励起波長を入れずに蛍光強度 600 がであることから、蛍光強度はさらに上がると推測できる。この結果から、EBECRYL-150 の液体の状態では、EBECRYL-150 自身が発光する可能性があると考えた。そのため、紫外線が当たらない環境下ならば、液体シンチレータとして使える可能性があると考えたが、本研究ではそれは調べていない。これらの結果については、次章でさらに考察する。

\*2 試料の測定には新品の石英セルを用いた。蛍光剤などの混入の可能性はない。

## 第7章

# 考察

### 7.1 光重合開始剤による光量の低下

光重合開始剤を加えたシンチレータの、紫外光照射直後の様子を図 7.1 に示す。図の左から順番に Omnirad TPO-N、Omnirad 184、Omnirad TPO-L を表 5.2 に示した値で加えたシンチレータである。Omnirad TPO-N は無色透明だが、Omnirad TPO-L は赤色が呈色している。Omnirad 184 も、Omnirad TPO-L ほどではないが、赤色が呈色している。これらは数時間から 1 日ほどで無色透明になるため、光量測定は赤色が消えてから行った。この現象は光重合剤を加えなかったシンチレータには見られなかった。また、図 7.2 に Omnirad TPO-L の重量パーセント濃度 0.02 で加えたシンチレータの、紫外光照射直後の様子を示す。図 7.1 で示した時と異なり、赤色が呈色していない。第 5 章で述べた光量の結果を踏まえると、赤色の呈色具合が大きいほど光量が低いと言える。これら 2 つの結果から、光重合剤を加えたシンチレータでは化学消光が起きたと推測した。

化学消光は、主に基剤から溶質へのエネルギーの移行を減らす ([9])。化学消光では不純物分子が基剤の励起した電子を受け取る。この場合は、不純物分子が励起電子を受け取りやすい性質があると起こる。不純物と電子をやりとりすると、エキサイプレックスと呼ばれる準安定な分子化合物ができる ([9])。エキサイプレックスは、基底状態に戻る時に無輻射と輻射の 2 つのパターンをとるが、輻射遷移する時は、長波長の光がでる。

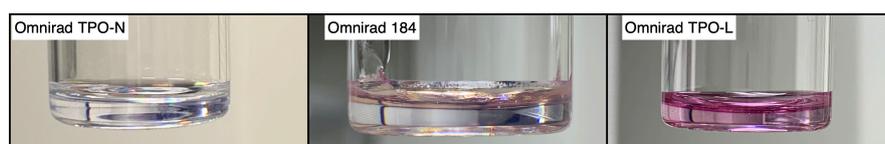


図 7.1 硬化直後の光重合開始剤を加えたシンチレータの様子。加えた光重合開始剤の種類は、左から順番に Omnirad TPO-N, Omnirad 184, Omnirad TPO-L である。

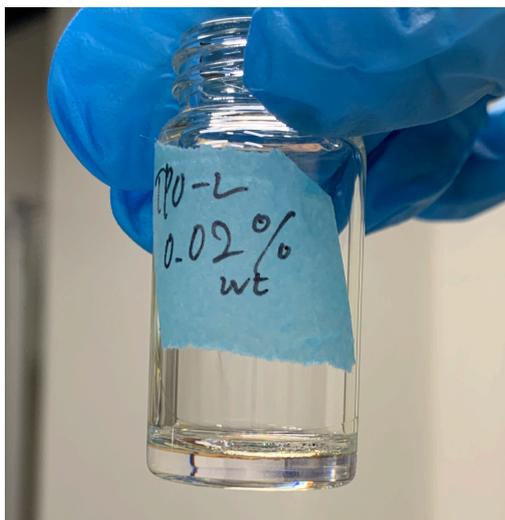


図 7.2 硬化直後の Omnirad TPO-L(重量パーセント濃度 0.02) を加えたシンチレータの様子。

## 7.2 EBECRYL-150 の基剤としての振る舞い

従来のシンチレータでは、基剤に加える溶質の量は質量比で  $10^{-3}$  から  $10^{-2}$  である [9]。これは、基剤のベンゼン環が効率よく励起して、蛍光剤にエネルギーを移行するからだと考えた。そのため、本研究では、ベンゼン環をもつアクリレートモノマーが基剤ならば、PVT や PS ベースのシンチレータと同程度の光量をもったシンチレータが作れると考えていた。しかし、5.6 節で示した結果より、本研究では基剤に対して質量比  $10^{-1}$  の量の蛍光剤を加えても市販品と同程度の光量は得られなかった。この原因について考察する。第 6 章で示した蛍光スペクトルの結果より、EBECRYL-150 は液体の状態ならば波長 400 nm の蛍光を出す。しかし、この 400 nm にある蛍光ピークは硬化後の固体では見られず、低波長側の波長にシフトしている。一般的にベンゼン環の発光は 300 nm 以下の低波長であるため、図 6.8 で 290 nm 付近の蛍光強度が上がっているのはベンゼン環による効果だと考えられる。しかし、本研究では PVT や PS ベースと同等の光量を得られていない。そのため、ベンゼン環の有無以上に紫外光で硬化する化学的性質が、溶質へのエネルギー移行を阻害している可能性が考えられる。この仮説を検証するには、ベンゼン環を持たない UV 硬化アクリル樹脂シンチレータを作成して本研究で得た光量と比較する必要がある。これは今後の課題である。

## 7.3 今後の展望

今後、UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの発光機構を知るために調べるべき事柄について述べる。

本研究では、アクリレート系モノマー EBECRYL-150 を用いて UV 硬化アクリル樹脂のシンチレータを作った。アクリレートモノマーのベンゼン環の有無が光量に影響を与えているのか調べるために、ベンゼン環のないアクリレートモノマーを用いてシンチレータを作成することが、UV 硬化アクリル樹脂シンチレータの発光機構を理解するのに役立つと考える。真空脱気と窒素置換の実験では、窒素置換による光量の向上が確認できた。この結果から真空脱気だけでは溶液中の酸素を取り除けなかった可能性と、窒素を入れることで基剤から溶質へのエネルギーの移行が上手く行くようになった可能性の 2 つが考えられる。一般的に、酸素があると光量が減少することから、1 つ目の可能性が高いと考えている。しかし実際に溶液中の酸素濃度を測定してはいないため、はっきりしたことは分からない。そのため、溶液中の酸素濃度の測定は今後の課題である。また、今回ベンゼン環を持つことで PVT や

PS ベースのシンチレータと同等の光量を得ることを期待したが、達成することはできなかった。UV 硬化するアクリレート系モノマーにおいて、ベンゼン環を持つことが必須事項かは今後の課題である。

## 第 8 章

### 結論

本研究ではベンゼン環のあるアクリレートモノマー EBECRYL-150 を基材とし、蛍光剤に DPO、波長変換剤に POPOP を用いて UV 硬化アクリル樹脂シンチレータを作ることができた。

線源  $^{241}\text{Am}$  の光電吸収ピークを用いた測定では、紫外光照射時間には最適時間があることがわかった。UV 硬化アクリル樹脂シンチレータでは、紫外光を当てすぎると基剤の化学的性質を変えてしまい、蛍光機構にダメージを与える。

UV 硬化アクリル樹脂を作る際に用いられている光重合開始剤はその濃度によって、蛍光を阻害する性質があることがわかった。特に紫外光照射直後に赤色を呈色する割合が大きいほど、光量は低くなる。

窒素置換と真空脱気が光量へ与える影響を調べた実験では、窒素置換すれば光量が増えることがわかった。

DPO 濃度と光量の関係を調べた実験より、蛍光剤の基剤に対する飽和濃度を超えても光量が増えることがわかった。しかし、結晶が析出すると光量は下がる。

蛍光剤と波長変換剤の割合を調べた実験では、DPO20% なら DPO と POPOP の混合割合はモル比で 80:1 が最適であることがわかった。また、蛍光の減衰時間は BC404 と大差ないことがわかった。

蛍光スペクトル測定では、EBECRYL-150 は液体の状態なら波長 400 nm の蛍光を出し、固体では主に波長 290 nm に蛍光を出すことがわかった。

本研究では、 $^{241}\text{Am}$  を用いて UV 硬化アクリル樹脂を用いてシンチレータの蛍光機構の特徴を調べた。本研究で調べたことは、今後の UV 硬化アクリル樹脂を用いたシンチレータ開発において重要な意味を持つ。蛍光機構の更なる理解には今後も研究が必要である。

# 付録

## A 窒素ガス純度 95 パーセントにおける Integrated ADC 値分布

第 5 章で示した図 5.14 における窒素ガス純度 95% の時の測定結果の分布を下に示す。セット 1 の測定時の分布を図 A.1 に、セット 2 の測定時の分布を A.2 に示す。セット 1 とセット 2 の測定期間は 1 ヶ月ほど空いており、同日に測定したものではない。シンチレータ作成時の作業環境の温度は、エアコンディショナーで一定に保って行った。また、測定に用いた溶液の蛍光剤濃度も同じである。

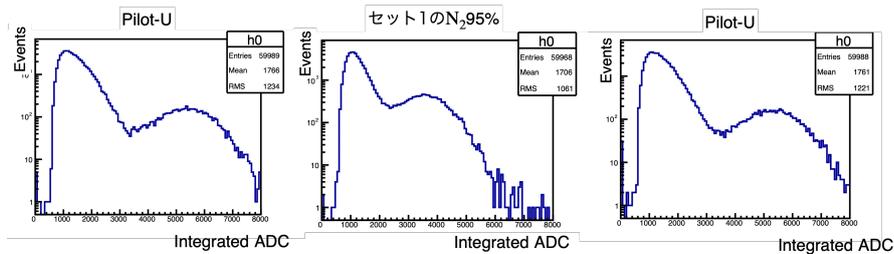


図 A.1 セット 1 の測定時の Integrated ADC 分布。左から順番に、測定前の Pilot-U、窒素ガス純度 95% のシンチレータ、測定後の Pilot-U の分布である。

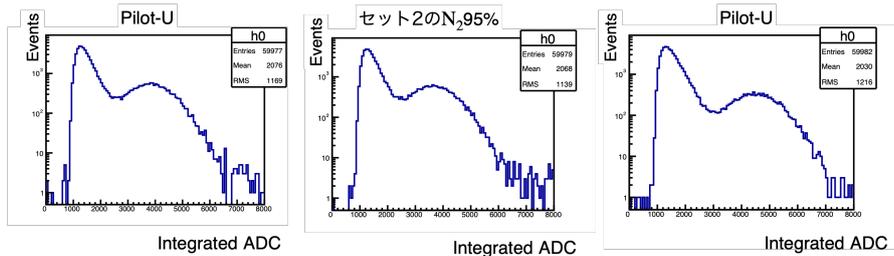


図 A.2 セット 2 の測定時の分布。左から順番に、測定前の Pilot-U、窒素ガス純度 95% のシンチレータ、測定後の Pilot-U の分布である。

## 謝辞

本研究を行うにあたり、多くの方々にお世話になりました。この場を借りて御礼申し上げます。

2年間にわたりご指導くださった南條創教授には、実験の仕方や結果の解釈など研究を進めていく上で必要な姿勢を教えてくださいました。スライドの作成方法や文章の書き方など、「簡潔にわかりやすく」は自分自身が研究内容のことをしっかり理解していないと書けないため、自身の知識不足や理解の不足などを痛感させられました。修論執筆中は、コメントで「ロジックは？」と書かれることが多かったです。論理的に文章を書くことの難しさと大切さを教えてくださいました。また、南條さんはいつもその場の状況を、慣用句や諺などで的確に表現されるので、その語彙力の高さに密かに憧れていました。

静岡大学電子工学研究所ナノビジョン研究部門の越水正典教授には、本研究を進める上でのアイデアを多くいただきました。直接お話する機会はあまりありませんでしたが、プラットフォーム A 研究会での発表資料などは、本研究を進める指針となりました。

大阪大学大学院理学研究科化学専攻錯体化学研究室の吉成信人教授には、分光光度計の使い方を、初心者の方にわかるように一から丁寧に教えてくださいました。ありがとうございました。

大阪大学大学院理学研究科技術部分析機器測定室の伊藤彰厚氏と川村和司氏には、シンチレータ作成後に析出した白い粉の結晶の正体を分析していただきました。いただいた結果は、本研究を進める上でとても重要な情報もっていました。ありがとうございました。

KOTO 実験の皆様には大変お世話になりました。小寺克茂さんには、実験で悩んでいる時に優しく声をかけていただきました。また実験器具で足りないものがあり困っている際には、「これを使っていいよ。」と色々なものを借してくださいました。白石諒太さんには、OSK ミーティングや修論の発表練習の際に沢山アドバイスをいただきました。特に修論の発表練習の際には夜遅くまで議論に参加してくださいました。また、その翌日にも「あの結果は大丈夫だった？」などと気にかけてくださり、とても嬉しかったです。Mario Gonzalez さんには、KEK ビームテストの際にアドバイスをいただきました。研究室旅行で一緒にマシュマロを焼いたことがとても思い出深いです。小野啓太さんには、データの解析や結果の解釈などで大変お世話になりました。副査提出の直前には、J-PARC の深夜シフトにも関わらず、どうすればいいのかを一緒に悩んでくださり、とても心強かったです。これからも NMIXX に招ってください。川田悠統さんには、日々の研究生活でお世話になりました。実験方法や研究の些細なことで悩んでいる時に一緒に悩んでくださいました。また私が疑問に思ったことは Google で調べて教えてくださいました。

同じ KOTO 実験グループの小川大樹くん、本間芽糸さんには、修士 1 年生にも関わらず 6 月のコラボレーションミーティングで発表するなど、自身の研究をストイックに進める姿勢に常に刺激をもらっていました。本間さんとは、いつも 1 時間コースで雑談をしてしまって申し訳なかったです。でも、本間さんと話す時間はとても楽しかったです。ただ、夜遅くまで残って実験やスライドを作っている話を聞き、今後体調を崩さないか心配です。小川くんに関しては、昼夜逆転生活が元の生活に戻ることを祈っています。

他の KOTO コラボレータの皆様にも大変お世話になりました。月一回の JUM では、鋭い質問や、今後の実験の進め方など多くのアドバイスをいただきました。ありがとうございました。

ATLAS 実験グループの皆様にも大変お世話になりました。増渕達也准教授には、今年度お世話になりました。実験グループは異なりますが、コーヒーを淹れに大部屋にいらっしゃった際の雑談が楽しかったです。廣瀬穰助教には、TA などで大変お世話になりました。また、発表練習の際には鋭いコメントを多くいただきました。

Lakmin Wickremasinghe さんには、バターチキンカレーやタンドリーチキンなどとても美味しい料理を、私たちにたくさん教えてくださいました。また実験がうまくいかない時には励ましてくださり、とても嬉しかったです。荒木田陸斗さんと久郷莉奈さんとは、あまりお話しする機会はありませんでしたが、お話しした際には、私の話をいつも優しく聞いてくださり嬉しかったです。北野至くんは、バンドを頑張っていて青春している感じがとても眩しかったです。

同期の泉尾翼くんは、バイトなどで忙しいのにいつも学業と両立させていてすごいなあと思っていました。また、発表スライドの作成などを前もってして、その姿を真似していくうちに、タスクを早めにこなす習慣がつかまりました。ありがとうございました。

4年生の石井耀くん、廣瀬祐さん、松田英晃くんはいつも仲良く楽しそうに実験している姿が印象的でした。また発表練習では本質をついたコメントを多くいただきました。修士課程に進んでも、本質を見抜く力をさらに育てていかれることだろうと感じています。

秘書の前田純子さん、清川聖子さんには実験に必要な多くの物品の発注をしていただきました。ありがとうございました。

最後に、私を大学院まで通わせてくれた両親、そして学生生活に関する様々なアドバイスをくれた兄に感謝を述べたいと思います。本当にありがとうございました。

## 引用・参考文献

- [1] A. Ceccucci (CERN), Z. L. L. and (KEK), Y. S. (2020) *CKM Quark-Mixing Matrix*, Chap. 12: Particle Data Group.
- [2] Ahn, J. K., Antonelli, A., Anzivino, G. et al. (2025) “Proposal of the KOTO II experiment,” URL: <https://arxiv.org/abs/2501.14827>.
- [3] Brod, J., Gorbahn, M., and Stamou, E. (2011) “Two-loop electroweak corrections for the  $K \rightarrow \pi \nu \nu$  decays,” *Physical Review D—Particles, Fields, Gravitation, and Cosmology*, **83**, No. 3, 034030.
- [4] Buras, A. J., Buttazzo, D., Girrbach-Noe, J., and Knegjens, R. (2014) “Can we reach the Zeptouniverse with rare K and B s, d decays?” *Journal of High Energy Physics*, **2014**, No. 11, 1–43.
- [5] Ahn, J., Beckford, B., Campbell, M. et al. (2021) “Study of the  $KL \rightarrow \pi^0 \nu \nu$  Decay at the J-PARC KOTO Experiment,” *Physical review letters*, **126**, No. 12, 121801.
- [6] Aebischer, J., Buras, A., and Kumar, J. (2020) “Another SMEFT story: Z facing new results on  $\varepsilon/\varepsilon$ ,  $\Delta MK$  and  $K \rightarrow \pi \nu \nu$ ,” *arXiv preprint arXiv:2006.01138*.
- [7] Nagamiya, S. (2012) “Introduction to J-PARC,” *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, **2012**, No. 1, 02B001, DOI: [10.1093/ptep/pts025](https://doi.org/10.1093/ptep/pts025).
- [8] , URL: <https://kds.kek.jp/event/53355/>.
- [9] 小林正明 (2014) 『シンチレータを用いる放射線計測』, ブイツーソリューション.
- [10] Hayashi, N. and Koshimizu, M. (2025a) “Development of UV-cured plastic scintillators having high scintillation light yields,” *Journal of Luminescence*, **277**, 120993, DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2024.120993>.
- [11] Antonelli, A., Auffray, E., Brovelli, S. et al. (2024) “Development of nanocomposite scintillators for use in high-energy physics,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **1069**, 169877, DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2024.169877>.
- [12] 東京化成工業株式会社 (2025a) 「2,5-Diphenyloxazole」, URL : <https://www.tcichemicals.com/JP/ja/p/D0902>.
- [13] 東京化成工業株式会社 (2025b) 「1,4-Bis[2-(5-phenyloxazolyl)]benzene」, URL : <https://www.tcichemicals.com/JP/ja/p/B0509@>.
- [14] Kienzle, W., Weisz, S., Burgun, G., Matthiae, G., and Vanderhagen, R. (1975) “Scintillator developments at CERN,” Technical report, European organization for nuclear research.
- [15] Guillaume H.V. Bertrand, F. S., Matthieu Hamel (2023) “Current status on plastic scintillators modifications,” *HAL*.
- [16] ダイセル・オルネクス株式会社 (2025) 「アクリレートモノマー」, URL : <https://www.daicel-allnex.com/products/product01.html#2f>.

- [17] 株式会社 DJK (2025) 「UV 硬化樹脂 (光ラジカル重合)」, URL : <http://www.djklab.com/parts/service/pdf/hikari-radical-1.pdf>.
- [18] Hayashi, N. and Koshimizu, M. (2025b) “Development of UV-cured plastic scintillators having high scintillation light yields,” *Journal of Luminescence*, **277**, 120993.
- [19] 添加剤ドットコム (2025a) 「Omnirad TPO-L | IGM Japan 合同会社」, URL : <https://www.tenkazai.com/product-igm/omniradtpol.html>.
- [20] 添加剤ドットコム (2025b) 「Omnirad TPO N(former Irgacure TPO)」, URL : <https://www.tenkazai.com/product-igm/omniradtpn.html>.
- [21] 添加剤ドットコム (2025c) 「Omnirad 184 (former Irgacure 184)」, URL : <https://www.tenkazai.com/product-igm/omnirad184.html>.
- [22] NIST (2025a) “Element/Compound/Mixture Selection,” URL: [https://physics.nist.gov/cgi-bin/Xcom/xcom3\\_2](https://physics.nist.gov/cgi-bin/Xcom/xcom3_2).
- [23] National Nuclear Data Center, B. “Chart of Nuclides,” URL: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/>.
- [24] NIST (2025b) “ASTAR : Stopping Power and Range Tables for Alpha Particles,” URL: [https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/ap\\_table.pl](https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/ap_table.pl).
- [25] NIST (2025c) “ESTAR: Stopping Power and Range Tables for Electrons,” URL: [https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/e\\_table.pl](https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/e_table.pl).
- [26] Bogdan, M., Genat, J.-F., and Wah, Y. (2010) “Custom 12-Bit, 500MHZ ADC/Data Processing Module for the KOTO Experiment at J-Parc,” in *2010 17th IEEE-NPSS Real Time Conference*, 1–2, DOI: [10.1109/RTC.2010.5750452](https://doi.org/10.1109/RTC.2010.5750452).
- [27] グレン F. ノル (1996) 『放射線計測ハンドブック 2 版』, 日刊工業新聞社.
- [28] 浜松ホトニクス株式会社 (2017) 「光電子増倍管 その基礎と応用」, Technical report, 浜松ホトニクス株式会社.
- [29] 日本分光 (2025) 「分光蛍光光度計の基礎」, URL : <https://www.jasco.co.jp/jpn/technique/internet-seminar/fp/fp4.html>.