

ベータ崩壊核種の作る相互作用場における電気化学的起電力生成装置の出力信号増大現象に関する研究

須田, 翔哉

<https://doi.org/10.15017/1931896>

出版情報：九州大学, 2017, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

ベータ崩壊核種の作る相互作用場における電気化学的
起電力生成装置の出力信号増大現象に関する研究

九州大学大学院工学府
エネルギー量子工学専攻

須田 翔哉

平成 30 年 1 月

目次

第1章 序論	1
1.1. 弱い相互作用と標準理論	1
1.1.1. フェルミ粒子の運動を記述する方程式	1
1.1.2. ゲージ原理	3
1.1.3. GWS 理論	5
1.1.4. 自発的対称性の破れ	5
1.1.5. ニュートリノの相互作用断面積計算	5
1.1.6. ニュートリノ測定実験	9
1.1.7. ニュートリノ振動	10
1.1.8. 弱い相互作用現象の統一的な記述	12
1.2. 先行研究の実験結果と弱い相互作用との関連	12
1.2.1. 環境中ニュートリノ場における検出器出力信号測定実験	13
1.2.2. 新型転換炉周辺で行った実験	14
1.2.3. 原子炉ニュートリノ束の評価計算	15
1.2.4. 生糸の替りに他の繊維を用いた実験	17
1.2.5. 長期間に渡る出力信号測定実験	18
1.2.6. 溶存酸素濃度測定実験	19
1.2.7. 温度変化による出力信号への影響	20
1.3. 検出器出力信号の特性	22
1.4. ニュートリノの内部運動存在の可能性	22
1.4.1. ニュートリノの内部構成粒子	23
1.4.2. 内部構造を持つニュートリノと結合する可能性のある付加粒子	31
1.5. 先行研究の不足点と本研究の目的	32
1.6. 本論文の構成	32
第2章 検出器出力信号基礎特性解明のための実験	34
2.1. 生物由来物質を利用した電気化学的起電力生成装置の概要	34
2.2. 溶存酸素測定用検出器	37
2.3. 生物由来物質である生糸	39
2.4. セリシン除去試料を用いた実験	41
2.4.1. 試料の準備	41
2.4.2. 検出器出力信号測定実験	43
2.5. 検出器内に溶存するイオンの定量分析	45
2.6. 溶存酸素測定実験	48
2.6.1. 過去の溶存酸素濃度測定実験の再確認	48
2.6.2. 炭素極板側の溶存酸素濃度測定実験	49

2.7. 実験結果から明らかになった検出器の特性	50
第3章 PWR および大強度トリチウム線源を用いた検出器出力信号測定実験	51
3.1. PWR 周辺での実験	51
3.2. 大強度トリチウム線源を用いた実験	53
3.3. 原子炉および大強度トリチウム線源を用いた実験結果に対する考察	55
3.4. 検出器出力信号増大効果のトリチウム線源からの距離依存性実験	57
3.5. 大強度トリチウム線源を用いた実験から得られた検出器出力信号特性	58
第4章 検出器出力信号の電気化学的解析	60
4.1. 検出器の出力信号生成原理	60
4.2. 電気化学的解析模型	63
4.3. 検出器出力電流の電気化学的解析	67
4.4. 検出器出力信号へのトリチウムの寄与の見積もり	69
4.5. 質量生成場 BH による検出器出力信号増大効果の距離依存性解析	72
4.6. 検出器の応用	74
第5章 結論	75
謝辞	77
参考文献	78

第1章 序論

1.1. 弱い相互作用と標準理論

自然界には電磁相互作用、弱い相互作用、強い相互作用、重力相互作用の4つの基本的な相互作用が存在するとされている。この中の電磁相互作用と弱い相互作用を統一して電弱相互作用(電弱理論)として記述するのが GWS(Glashow-Weinberg-Salam)理論^[1,2,3]である。この GWS 理論と強い相互作用を説明する量子色力学、そして素粒子の質量生成機構に係わる自発的対称性の破れ^[4,5,6]を総称して標準理論という。ニュートリノの W ボソンや Z ボソンを介した相互作用断面積は電弱理論内で精密に定式化されているが、電弱理論は2体間の遷移行列要素の計算のための考えであり、ニュートリノ振動現象との統一的な説明には至っていない。

弱い相互作用に関わるニュートリノはスピン 1/2 を持つ中性粒子だが、相互作用に関わるのは左巻き粒子に限定され、反ニュートリノでは右巻き粒子のみが作用する。この実験事実を説明するために、弱い相互作用ではベクトル(V)型と軸性ベクトル(AV)型の両方が介在し、その固有状態が相互作用する^[7]V-A 型相互作用として定式化されている。またニュートリノの相互作用断面積は極めて小さく、例えば電子と電子ニュートリノとの散乱断面積は $10^{-44} [\text{cm}^2/E_\nu(\text{MeV})]$ 程度^[8]である。

1.1.1. フェルミ粒子の運動を記述する方程式

ニュートリノはスピンを有するフェルミ粒子であるため、ニュートリノの運動を記述する波動方程式の候補としてディラック方程式が挙げられる。一方、歴史的には非相対論的量子力学において自由粒子の運動を記述する場合に、次に示すシュレディンガー方程式が使われた。

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2\psi(t,\mathbf{x}) = i\hbar\frac{\partial\psi(t,\mathbf{x})}{\partial t} \quad (1.1)$$

$m, \psi(t, \mathbf{x})$ はそれぞれ自由粒子の質量と波動関数である。シュレディンガー方程式は非相対論的古典論の運動エネルギーの式

$$E = \frac{p^2}{2m} \quad (1.2)$$

の両辺を次に示す微分演算子に置き換えた式と位置づけられる。

$$\begin{cases} E \rightarrow i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \\ \mathbf{p} \rightarrow \frac{\hbar}{i} \nabla \end{cases}$$

(1.2)式の非相対論的古典論のエネルギーの式に対して、相対論的なエネルギーは

$$E^2 = (\mathbf{pc})^2 + (mc^2)^2 \quad (1.3)$$

と表される。この式の両辺を(1.3)式の微分演算子で置き換えてシュレディンガー方程式を相対論に拡張したのが以下に示すクライン-ゴールドン方程式である。

$$\left[\hbar^2 \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} - c^2 \nabla^2 \right) + m^2 c^4 \right] \psi = 0 \quad (1.4)$$

クライン-ゴールドン方程式を4元ベクトルで表現する場合は

$$\begin{cases} i\hbar \partial^\mu = i\hbar \frac{\partial}{\partial x_\mu} = \left(\frac{i\hbar}{c} \frac{\partial}{\partial t}, \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \right) \\ i\hbar \partial_\mu = i\hbar \frac{\partial}{\partial x^\mu} = \left(\frac{i\hbar}{c} \frac{\partial}{\partial t}, -\frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial \mathbf{x}} \right) \end{cases} \quad (\mu = 0, 1, 2, 3)$$

という4元量を用いて

$$[\hbar^2 \partial^\mu \partial_\mu + m^2 c^2] \psi = 0 \quad (1.5)$$

となる。ここでは上付き文字は反変ベクトル、下付き文字は共変ベクトルである。しかし、クライン-ゴールドン方程式は実際にはスピン零の粒子が従う波動方程式であった。

スピンを有する相対論的なフェルミ粒子の運動を記述するためには、クライン-ゴールドン方程式では不適切であり、他の方程式が必要になる。そこで P.A.M. Dirac は、ディラック行列 α, β を導入して次のような方程式を提案した。

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \left(\frac{\hbar c}{i} \alpha^k \frac{\partial}{\partial x^k} + \beta mc^2 \right) \psi \quad (k = 1, 2, 3) \quad (1.6)$$

この方程式の2乗がクライン-ゴールドン方程式に一致するために、ディラック行列 α, β

は次の要請を受ける。

$$\begin{cases} \alpha^j \alpha^k + \alpha^k \alpha^j = 2\delta^{jk} \\ \alpha^k \beta + \beta \alpha^k = 0 \\ \beta^2 = 1 \end{cases}$$

ここで、ディラック方程式で導入されたディラック行列 α, β の代わりに、相対論的な 4 元ベクトルの記述に合ったガンマ行列を次のように定義される。

$$\begin{cases} \gamma^0 = \beta \\ \gamma^k = \beta \alpha^k \end{cases}$$

ガンマ行列を使うと、ディラック方程式は次のように書き換えられる。

$$\begin{aligned} i\hbar \left(\gamma^0 \frac{\partial}{\partial x^0} + \gamma^1 \frac{\partial}{\partial x^1} + \gamma^2 \frac{\partial}{\partial x^2} + \gamma^3 \frac{\partial}{\partial x^3} \right) \psi - mc\psi \\ = (i\hbar \gamma^\mu \partial_\mu - mc) \psi = 0 \quad (\mu = 0, 1, 2, 3) \end{aligned} \quad (1.7)$$

これが、相対論的なフェルミ粒子の自由場の運動を記述する方程式である。電子の運動がディラック方程式に従うことは知られているが、ニュートリノの運動がこの方程式だけで記述できることにはならない。

1.1.2. ゲージ原理

波動関数の位相変換に対して方程式が不変であることを要請し、その要請から相互作用を規定する原理をゲージ原理という。不変性の要請から導入される場をゲージ場という。

電磁相互作用は 1 次元ユニタリ群(U(1))ゲージ不変性で定式化されている。U(1)は実数-虚数平面上的の回転群である。ディラック方程式に従うフェルミ粒子場 $\psi(x)$ の 1 次元ユニタリ変換を考える。

$$\psi(x) \rightarrow \psi'(x) = \exp(-iq\alpha(x)) \psi(x)$$

ここで $\alpha(x)$ は $x = (ct, \mathbf{x})$ の 4 元量の関数である。このゲージ変換によって変換されたフェルミ粒子場 $\psi'(x)$ をディラック方程式に代入すると

$$(i\gamma^\mu \partial_\mu - m)\psi'(x) = q(\partial_\mu \alpha(x))\gamma^\mu \psi'(x) \neq 0 \quad (1.8)$$

となり、ゲージ関数の微分 $\partial_\mu \alpha(x)$ が残る。相互作用ポテンシャル A_μ を導入するには、共変微分 D_μ の形を用いて

$$\partial_\mu \rightarrow D_\mu = \partial_\mu + iqA_\mu(x) \quad (1.9)$$

という微分の置き換えを行う。 A_μ を導入すると(1.8)式は

$$\left[i\gamma^\mu (\partial_\mu + iqA_\mu(x) + iq\partial_\mu \alpha(x)) - m \right] \psi'(x) = 0 \quad (1.10)$$

となる。一方、フェルミ粒子の場 $\psi(x)$ の従うディラック方程式は

$$\left[i\gamma^\mu (\partial_\mu + iqA_\mu(x)) - m \right] \psi(x) = 0 \quad (1.11)$$

である。ポテンシャル場 A_μ がゲージ場として

$$A_\mu(x) \rightarrow A'_\mu(x) = A_\mu(x) + \partial_\mu \alpha(x) \quad (1.12)$$

によって変換されると仮定すると(1.11)式は

$$\left[i\gamma^\mu (\partial_\mu + iqA'_\mu(x)) - m \right] \psi'(x) = 0 \quad (1.13)$$

と書き換えられ、(1.11)式と比較してゲージ変換に対して方程式の形が不変であることがわかる。さらにゲージ場の運動エネルギーを含めたラグランジアンを考えると、電磁相互作用ではゲージ不変性の要請から、相互作用を媒介する場(光子)は質量が零とされる。実際、電磁相互作用の相互作用半径は無窮大であるから、これは事実と合致する。

弱い相互作用では、常に2種類のフェルミ粒子が対になって相互作用するため、核力に関わるアイソスピンの場合の拡張で、特殊2次ユニタリ群(SU(2))ゲージ不変性で定式化される。電磁相互作用で導入されるゲージ場 A_μ に対応する弱い相互作用でのゲージ場は W_μ であるが、この場合でも電磁相互作用の場と同じように相互作用を媒介する場の質量が零に要請される。しかし実際の弱い相互作用の相互作用半径は非常に小さく、素粒子スケールとなっている。さらにゲージ不変性は電子とニュートリノの質量が等しいことも要請するが、これも事実と反する。以上のように、弱い相互作用を SU(2)ゲー

ジ不変性で取り扱おうとすると不具合が生じる。

1.1.3. GWS 理論

弱い相互作用は常に 2 つのフェルミ粒子が対になって、 W 、 Z ボソンが相互作用を媒介して相互作用するため、当初は電磁相互作用の 1 次ユニタリ群($U(1)$)ゲージ不変性の場合の拡張により特殊 2 次ユニタリ群($SU(2)$)ゲージ不変性で定式化できるように思われた。しかし相互作用媒介粒子の質量が零であることおよび、同じレプトン種として電子と電子ニュートリノの質量が等しいことが要請された。しかし実際は極めて小さな相互作用断面積を説明するために、ボソンは重い質量を持ち、ニュートリノは質量を持たないか、持っても極めて小さいことが実験によって示唆されていた。そこで、GWS(Glashow-Weinberg-Salam)理論では電磁相互作用と弱い相互作用を別のゲージ不変性で取り扱うのではなく、まとめて電弱相互作用の拡張として $U(1) \times SU(2)$ ゲージ不変性に基づいて議論することが導入された。導入されるゲージ場は $U(1)$ と $SU(2)$ に対応してそれぞれ B_μ, W_μ である。これらはフォトン場 A_μ とウィークボソン場 Z^0, W^\pm で書き直される。GWS 理論では電子とニュートリノの質量が等しい必要はなくなったが、依然ゲージ場の質量が零に要請されていた。

1.1.4. 自発的対称性の破れ

ゲージ場が質量を獲得できるように自発的対称性の破れという考えが導入された。物理法則はゲージ原理に従わなければならないが、真空についてはそれに該当しないという考えである。自発的対称性の破れの導入によって、ゲージ場はゲージ原理に従ったまま質量を獲得できるようになった。自発的対称性の破れに基づく質量生成機構をヒッグス機構と呼ぶ。ヒッグス機構を通じて、ニュートリノの極めて小さな相互作用断面積を説明するために、弱荷は電磁相互作用における電荷 e と基本的には同じ大きさであるとしながらも、 W^\pm, Z^0 の質量をそれぞれ 80 GeV、91 GeV 程度^[9]に設定している。

ただしヒッグス機構が関与するのは主にゲージボソン、荷電レプトン、クォークの質量であり、陽子・中性子等のハドロンおよびニュートリノの質量生成機構は別に存在すると考えられている。

1.1.5. ニュートリノの相互作用断面積計算

電弱理論において素粒子の相互作用はファインマン図を使って表され、相互作用カレントから遷移行列要素が計算される。ただし弱い相互作用はゲージボソンの質量が非常に重いため、相互作用時の運動量移行が無視できる場合が多い。このため伝播関数を用いずに点相互作用として考えることができる(フェルミ相互作用)。相互作用の強さを表す G_F はフェルミ結合定数と呼ばれる。

例として電子と電子ニュートリノとの荷電カレント反応

$$\nu_e(p_1) + e^-(p_2) \rightarrow e^-(p_3) + \nu_e(p_4)$$

を考える。荷電カレントとはニュートリノが同じ世代の荷電レプトンに変化する反応であり、媒介粒子は W^\pm である。相互作用のファインマン図を図 1-1 に示す。通常は図 1-1a に示すように運動量移行もファインマン図に表れるが、ウィークボソンの質量が重いためこれを無視して図 1-1b に示すように点相互作用で考える近似が成立する。

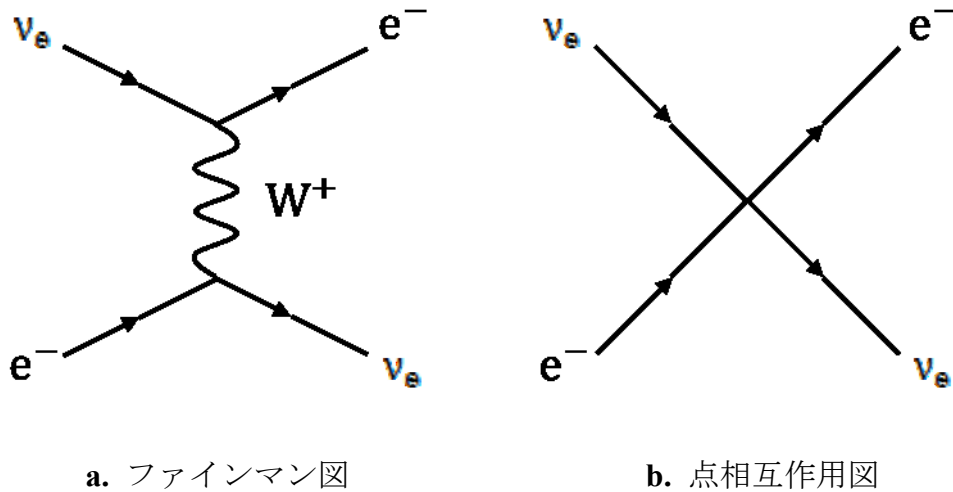


図 1-1 電子と電子ニュートリノの荷電カレント反応

量子力学の摂動論によると散乱反応の微分断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{m_e^2 m_\nu^2}{E_1 E_2 E_3 E_4} |M_{if,CC}|^2 \frac{p_f^2 dp_f}{v_0 dE_0} \quad (1.14)$$

と表される。 $v_0, p_f, E_{1,2,3,4}, M_{if}$ はそれぞれ入射粒子の相対速度、重心系における粒子の運動量、相互作用前後の 2 粒子の総エネルギー、始状態から終状態への遷移行列要素である。遷移行列要素はフェルミ結合定数に 2 つの相互作用カレントをかけた形

$$M_{if,CC} = \frac{G_F}{\sqrt{2}} j_{1,CC} j_{2,CC} \quad (1.15)$$

で表される。相互作用カレントは電磁相互作用のときのように V 型のカレントではなく、AV 型も加えて

$$j_{1,CC} j_{2,CC} = \sum_{\text{spins}} \left(\bar{u}_\nu(p_3) \gamma_\mu (1 - \gamma^5) u_e(p_2) \right) \left(\bar{u}_e(p_4) \gamma_\mu (1 - \gamma^5) u_\nu(p_1) \right) \quad (1.16)$$

とする。これを V-AV 型(V-A 型)相互作用と呼ぶ。これは GWS 理論の一部として弱い相互作用の CP 対称性の破れ等の実験事実を説明するために導入された。ここでニュートリノの波動関数を右巻きと左巻きに分けて

$$u_\nu = u_{\nu,R} + u_{\nu,L} = \frac{1 + \gamma^5}{2} u_\nu + \frac{1 - \gamma^5}{2} u_\nu$$

とすると $(\gamma^5)^2 = 1$ であるから

$$\bar{u}_e \gamma_\mu (1 - \gamma^5) u_\nu = \bar{u}_e \gamma_\mu (1 - \gamma^5) u_{\nu,L} \quad (1.17)$$

と書き換えられる。このように V-AV 型相互作用では左巻きニュートリノしか相互作用に関与しない。

(1.15)式の遷移行列要素を使い、さらにニュートリノの質量を零とすると重心系における微分断面積は、立体角に関して積分して

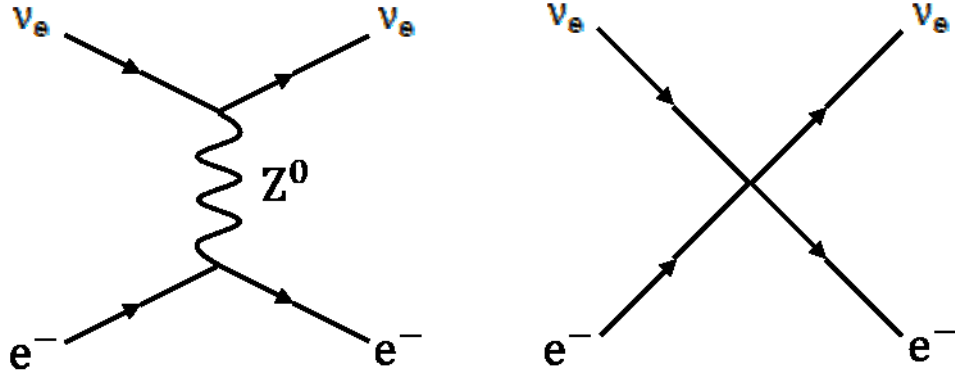
$$\sigma = \frac{4G_F^2}{\pi} p_f^2 \quad (1.18)$$

となる。

一方電子と電子ニュートリノの中性カレント反応

$$\nu_e + e^- \rightarrow \nu_e + e^-$$

を図 1-2 に示す。相互作用の媒介粒子は Z^0 である。



a. ファインマン図

b. 点相互作用図

図 1-2 電子と電子ニュートリノの中性カレント反応

遷移行列要素は

$$M_{if,NC} = -\sqrt{2}G_F j_{1,NC} j_{2,NC} \quad (1.19)$$

$$j_{1,NC} j_{2,NC} = \sum_{\text{spins}} (\bar{u}_e \gamma_\mu (g_V^e - g_{AV}^e \gamma^5) u_e) (\bar{u}_\nu \gamma_\mu (g_V^\nu - g_{AV}^\nu \gamma^5) u_\nu) \quad (1.20)$$

である。荷電カレントと $(1 - \gamma^5)$ のそれぞれの係数が異なっている。係数はニュートリノの場合は全て $1/2$ であるが、荷電レプトンの場合は

$$\begin{cases} g_V^l = -\frac{1}{2} + 2 \sin^2 \theta_W \\ g_{AV}^l = -\frac{1}{2} \end{cases} \quad (l = e, \mu, \tau)$$

となっている。 θ_W はワインバーグ角で

$$\sin^2 \theta_W \equiv 1 - \frac{M_W^2}{M_Z^2} \approx 0.23$$

と定義されている。電子とニュートリノの荷電カレント反応と中性カレント反応を合わせると $\nu_e e^- \rightarrow \nu_e e^-$ 反応の相互作用断面積となる。

ここまでは、運動量移行がゲージボソンの質量に比べて小さい場合を想定して点相互作用で記述したが、高エネルギー反応になると運動量移行を考慮して計算する必要がで

てくる。ゲージボソンの質量よりも十分に高いエネルギーでは、その質量を無視できるため相互作用の強さも電磁相互作用程度となる。

GWS 理論に基づくニュートリノの相互作用断面積を表 1-1 にまとめている。これらの相互作用断面積の値は実験結果とよく一致することが確かめられている^[10]。

表 1-1 GWS 理論に基づくニュートリノの相互作用断面積^[10]

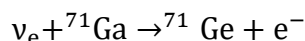
相互作用	相互作用断面積
$\nu_e e^- \rightarrow \nu_e e^-$	$\sigma_0 \left[\left(\frac{1}{2} + \sin^2 \theta_W \right)^2 + \frac{1}{3} \sin^4 \theta_W \right] \approx 9.5 \times 10^{-45} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)$
$\bar{\nu}_e e^- \rightarrow \bar{\nu}_e e^-$	$\sigma_0 \left[\frac{1}{3} \left(\frac{1}{2} + \sin^2 \theta_W \right)^2 + \sin^4 \theta_W \right] \approx 4.0 \times 10^{-45} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)$
$\nu_\mu e^- \rightarrow \nu_\mu e^-$	$\sigma_0 \left[\left(\frac{1}{2} - \sin^2 \theta_W \right)^2 + \frac{1}{3} \sin^4 \theta_W \right] \approx 1.6 \times 10^{-45} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)$
$\bar{\nu}_\mu e^- \rightarrow \bar{\nu}_\mu e^-$	$\sigma_0 \left[\frac{1}{3} \left(\frac{1}{2} - \sin^2 \theta_W \right)^2 + \sin^4 \theta_W \right] \approx 1.3 \times 10^{-45} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)$
$\nu_\mu e^- \rightarrow \nu_e \mu^-$	$\sigma_0 \approx 17 \times 10^{-45} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)$
$\bar{\nu}_\mu e^- \rightarrow \bar{\nu}_e \mu^-$	$\frac{1}{3} \sigma_0 \approx 5.7 \times 10^{-45} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)$
$\nu_e n \rightarrow e^- p$	$\sigma_N \left(1 + \frac{Q}{E_\nu} \right) \sqrt{1 + 2 \frac{Q}{E_\nu} + \frac{Q^2 - m_e^2}{E_\nu^2}}$
$\bar{\nu}_e p \rightarrow e^+ n$	$\sigma_N \left(1 - \frac{Q}{E_\nu} \right) \sqrt{1 - 2 \frac{Q}{E_\nu} + \frac{Q^2 - m_e^2}{E_\nu^2}} \Theta(E - Q)$
$\nu n \rightarrow \nu n$	$\sigma_N \frac{1 + 3g_{AV}^2}{g_V^2 + 3g_{AV}^2} \approx 9.3 \approx 10^{-44} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)^2$
$\nu p \rightarrow \nu p$	$\sigma_N \frac{1 + 3g_{AV}^2}{g_V^2 + 3g_{AV}^2} \left(4 \sin^4 \theta_W - 2 \sin^2 \theta_W + \frac{1}{4} \right) \approx 6.0 \times 10^{-46} \text{ cm}^2 \left(\frac{E_\nu}{\text{MeV}} \right)^2$

1.1.6. ニュートリノ測定実験

前述のとおりニュートリノはほとんど相互作用しないため、一般的に検出には巨大な装置が必要となる。例えば 1996 年から宇宙素粒子の観測を開始したスーパーカミオカ

ンデは直径 39.3 m、高さ 41.4 m の円筒形タンクに約 5 万トンの超純水を蓄えており、その内壁に設置された 1 万 2 千本もの光電子増倍管などから構成されている^[11]。検出器が大きいほど、一定の期間で検出できるイベント数も増える。スーパーカミオカンデの場合は、ニュートリノが原子核もしくは電子と相互作用して放出された荷電粒子が、水中の光速度(真空中の高速より遅い)を超えた時に発生するチェレンコフ光を光電子増倍管で増幅して検出する。このような巨大な検出器が世界各地に設置され、宇宙の初期の状態、太陽内部の活動、星の爆発過程などを調べるためにニュートリノ研究が盛んにおこなわれている。スーパーカミオカンデは 1998 年にニュートリノ振動の兆候を観測しており^[12]ニュートリノが質量を持つことが示唆された。

ニュートリノを検出する方法はチェレンコフ光を検出する方法の他に、逆ベータ崩壊で放出される荷電粒子を検出する方法がある。前者の方法では一つ一つの反応の時刻が分かること、荷電粒子のエネルギーからニュートリノのエネルギーの見当がつけられること、ニュートリノの方向も推測できる場合が多いことなどの長所があるが、低エネルギーニュートリノの検出には適さない。水中では光速はおよそ $0.75c$ であり、それを超える速度の荷電粒子は 5 MeV 以上のエネルギーを持つ必要があるため検出閾値は 5 MeV 程度になる。一方、後者の方法では個々のニュートリノのエネルギーや方向などは不明であり、詳しい時刻の情報も失われる場合が多いが、より低エネルギーのニュートリノを検出できる特徴がある。ロシアの SAGE という検出器は 60 トンのガリウムをタンクに充填して



という反応を利用した。検出閾値は反応の Q 値の 0.23 MeV である。

1.1.7. ニュートリノ振動

ニュートリノには、電子ニュートリノ ν_e 、ミューニュートリノ ν_μ 、タウニュートリノ ν_τ の 3 種類の存在が確認されている^[13,14,15]。これらは電子、ミュー粒子、タウ粒子等の荷電粒子と対をなして相互作用し、ニュートリノ系 3 種類と電子系 3 種類は、合わせてレプトンと呼ばれている。この 3 種類の区分は世代、もしくはフレーバと呼ばれる。

ニュートリノ振動とは、あるフレーバのニュートリノが発生した際、それを長距離飛行後に検出すると予測値よりも検出数が少なくなっていたり、別のフレーバのニュートリノとして検出される現象である。この現象は、飛行中にニュートリノのフレーバが特定の確率で変化することを示し、飛行中のニュートリノはフレーバ混合状態であるという仮定に基づいて説明されている。

ニュートリノ振動は 1957 年、ブルーノ・ポンテコルボによって K 中間子の振動(ハド

ロンの混合)から類推され、予言されていた^[16]。その後 1962 年に坂田昌一、牧二郎、中川昌美によって、ニュートリノフレーバの振動として定式化された。この定式化の中でフレーバ混合の様子は PMNS 行列^[17]で表現されている。基本的には 3 世代混合を仮定するが、この 3 世代にステライルニュートリノを導入して、4 世代以上の混合を考える場合もある^[18]。

振動モデルでは質量固有状態とフレーバ固有状態の 2 種類の固有状態を考えて、質量固有状態の混合の結果フレーバ固有状態として観測されるとしている。混合の度合いは時間と共に変化するため、ニュートリノの発生源からの距離によって観測されるフレーバ状態の確率が変わる。ここでは簡単のために電子ニュートリノとミューニュートリノの、2 世代混合の場合を取り扱う。フレーバ固有状態 $|v_F\rangle$ は混合行列 U_{Fj} 、質量固有状態 $|v_j\rangle$ 、ニュートリノのエネルギー E_j 、発生してから時間 t を用いて

$$|v_F\rangle = \sum_j U_{Fj} |v_j\rangle e^{-E_j t} \quad (1.21)$$

と表現される。運動量がフレーバニュートリノのものと等しいと仮定すると

$$E_j = \sqrt{p^2 + m_j^2}$$

である。混合を頭書くと

$$\begin{cases} |v_e\rangle = \cos \theta_{12} |v_1\rangle e^{-E_1 t} + \sin \theta_{12} |v_2\rangle e^{-E_2 t} \\ |v_\mu\rangle = -\sin \theta_{12} |v_1\rangle e^{-E_1 t} + \cos \theta_{12} |v_2\rangle e^{-E_2 t} \end{cases} \quad (1.22)$$

となるため、電子ニュートリノがミューニュートリノに変化する確率は

$$\begin{aligned} P(v_e \rightarrow v_\mu; t) &= |\langle v_e(0) | v_\mu(t) \rangle|^2 \\ &= \sin^2 2\theta_{12} \sin^2 \left(1.27 \frac{\Delta m_{12}^2 [\text{eV}^2] L [\text{km}]}{E_e [\text{GeV}]} \right) \end{aligned} \quad (1.23)$$

と計算される。ここではニュートリノはその小さな質量のために、ほぼ光速で運動するため時間依存の部分が飛行距離依存 $L[\text{km}]$ に書き換えられている。

実際のニュートリノ振動は 3 世代混合が基本であるため、PMNS 行列は 3×3 行列である。また単純な混合以外にも、CP 対称性破れを表現するための位相項も入っている。ニュートリノ振動観測によって振動周期に関連した各質量二乗差 Δm_{ij}^2 および、振幅に関連した混合角 θ_{ij} が推定できる。

電弱理論においてニュートリノは質量を持たないとされていたが、ニュートリノ振動観測実験によって、極めて小さな質量(例えば反電子ニュートリノの質量は $2.5 \text{ eV}/c^2$ より小さい^[19])を持つことが示唆されている。また近年のニュートリノ振動観測実験によって、原子炉由来の電子ニュートリノ振動が2通り存在することが明らかになっている。ひとつは KamLAND 実験で、反電子ニュートリノエネルギー3MeV の場合に振動距離が 100 km ^[20]であり、もう一方は Daya-Bay、RENO、D-Chooz 実験であり同エネルギーで振動距離が 3 km 程度である^[21,22,23]。この2通りの振動はそれぞれ別のフレーバへ変化していると考えられているが、本研究の後述の実験結果を踏まえると、短い振動距離の振動現象は原子炉の弱い相互作用場から、なんらかの影響を受けていると解釈できる可能性もある。

標準理論では、弱い相互作用の相互作用断面積とニュートリノ振動をそれぞれ別々の現象として記述することに成功しているが、それら両現象の統一的な説明は未だなされていない。

1.1.8. 弱い相互作用現象の統一的な記述

上述のように、弱い相互作用に関しては相互作用断面積、ニュートリノ振動の2つをそれぞれ独立に記述することが可能になっている。また最近では新たなニュートリノ成分としてステライルニュートリノが導入されたり、ベータ崩壊核種の寿命が太陽活動周期に相関して変動する実験結果の発表^[24]もあり、弱い相互作用の統一的な理解への関心は高まっている。さらに、強い相互作用の媒介粒子であるグルーオン及び電磁相互作用の媒介粒子である光子の質量が零であるのに対して、弱い相互作用の媒介粒子であるウィークボソンの質量のみが、 $80 \sim 91 \text{ GeV}$ 程度と非常に重いのが、この理由も形式的な説明にとどまっている。相互作用断面積やニュートリノ振動と共に、ウィークボソンの質量が重い理由などの説明も総合して行う試みは大変挑戦的で、興味深いものである。

1.2. 先行研究の実験結果と弱い相互作用との関連

先行研究では、生物由来物質を利用した電気化学装置(以下、検出器と呼称する)の出力信号測定実験が行われた^[25]。過去の実験において、検出器と弱い相互作用の関連を示唆する実験結果が得られていたが、この他にも検出器の出力信号特性を明らかにするため様々な実験が行われた。その中で特に本研究に関わる実験について説明する。

1.2.1. 環境中ニュートリノ場における検出器出力信号測定実験

先行研究において、検出器の出力信号測定を九州大学実験室で30日間続けると図1-3に示す特徴的な出力増加曲線が現れた。この環境では、原子炉等の大強度ニュートリノ源が近くに存在せず、基本的には宇宙普遍的に存在するニュートリノ、太陽由来のニュートリノ、地殻由来のニュートリノ等のみが存在することから、本実験環境を環境中ニュートリノ場と呼称する。図の縦軸の値は計測・記録した出力電圧を電流値に変換して記載している。入力インピーダンスを $1\text{ M}\Omega$ に設定しているため、 mV が nA に変換される。

検出器内には酸化電極及び還元電極が設置され、両電極は精製水に浸されている。酸化電極の周囲には生物由来物質である生糸を配置している。電極間には外部からの電圧印加を行っていないため、出力信号は自発的なものと考えられ、検出器内では起電力が発生していることが明らかになった。このため電池の一種ととらえることもでき、起電力システムとしては電力が本質的な量だが、内部での電気化学反応による電子の移送は電流による表示の方が分かりやすいため、図の縦軸に電流[nA]を主体に記載する。基本的には電池の発電と同様に、自発的に起電力生成が起きているため電力 RI^2 が一定な出力となっている^[26]。

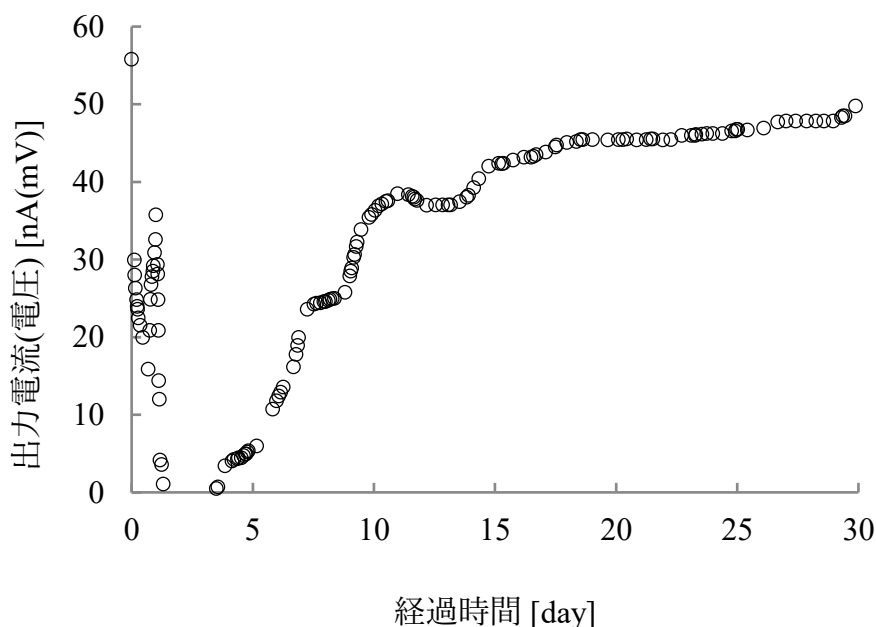


図 1-3 検出器の特徴的な出力電流増加曲線^[28]。最終的に 50 nA 程度の電流が定常的に流れるようになった。

測定開始直後の検出器出力電流初期ドリフト 55 nA が約 1 日で 20 nA に下がり、測定開始約 2 日後にピーク(35 nA)が現れた。この出力電流ピークを初期ピークと呼ぶ。初期ピーク後出力電流は 0 nA になっている。その後再び出力電流が上昇し最終的に約 50 nA でほぼ安定した。この結果から測定開始後約 20 日目には検出器内で安定して陽イオンと陰イオンが生成され、そのイオンを使った酸化還元反応が定常的に起こっていることが示唆された。陽イオン及び陰イオンの生成が無ければ反応速度は低下して出力電流も時間と共に低下すると考えられる。

出力電流の立ち上がりが約 1 週間もかかっている理由は、主に検出器内でニュートリノ入射に伴って発生するイオンが蓄積していくのにそれだけの日数がかかるためだと考えられる。初期の 1 週間でも電気化学反応が起こってはいるが、それに関わるイオン濃度が小さいため、出力電流は過渡期にあるものと理解される。これらのことは第 4 章で定量的に議論する。

出力電流の初期ドリフトは電極に蓄積されていた電荷の開放や、精製水中に存在するイオン類の電極表面での酸化還元反応に起因するものと考えられる。初期ピークに関しては生糸表面から溶出したイオン類の酸化還元反応に起因するものと考えられる。これらの反応では検出器内の酸素を消費している可能性がある。

出力電流測定実験の再現性に関しては、同じ時期に測定を開始したものは標準偏差 20%以内程度に収まるが、測定時期が異なると 2 倍以上異なることもある。この測定時期による変化は太陽活動との相関がある可能性もある。

1.2.2. 新型転換炉周辺で行った実験

本実験は重水減速混合酸化物(MOX)燃料の新型転換炉(ATR)炉心から 18 m の位置と九州大学実験室(環境ニュートリノ場)の 2 か所で行われた。測定結果を図 1-4 に示す。ATR 周辺への設置は 3 日間しか行われなかったため、測定データも該当部分しか表示していない。この実験結果から、前者の検出器出力信号が後者のものよりも明らかに増大している結果が得られた。本実験において検出器設置場所は放射線管理区域外であり、ガンマ線、中性子線は十分遮蔽されており、建造材コンクリート等からの影響を考慮してもバックグラウンドレベルであることが確認されているため、検出器出力信号の弱い相互作用との関連が示唆された。ATR での弱い相互作用に関する代表的な低エネルギーベータ崩壊核種は燃料内ではプルトニウム 241 等であるが、減速材に重水を用いているため、中性子捕獲反応によって生成されるトリチウムも多量に存在する。

しかし前述のように、電弱理論におけるニュートリノの相互作用断面積は極めて小さく、本実験結果を説明することができない。電弱理論は本来、2 体粒子間の散乱現象に対して適用されるものであるため、本実験の現象は電弱理論の適用範囲外の事象と考えられる。本実験の妥当性が確認された場合は、電弱理論を拡張して散乱現象以外に適用

することが必要になると考えられる。

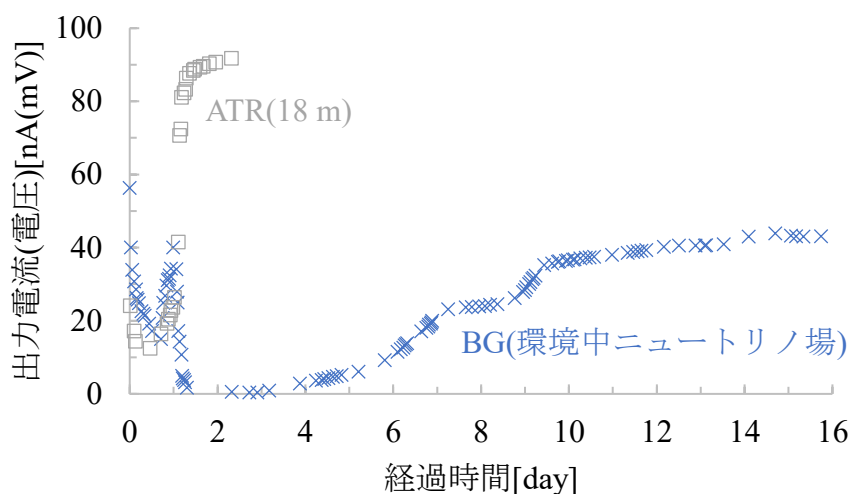


図 1-4 ATR 周辺における実験結果。ATR の近くに設置した検出器の出力信号が、環境中ニュートリノ場に設置した検出器のものよりも増大している。

1.2.3. 原子炉ニュートリノ束の評価計算

出力信号と弱い相互作用との関連を明らかにするために、前節の ATR 実験における検出器設置場所の原子炉由来ニュートリノ束の計算も行われた。この計算と同時に、ATR 実験を再確認するために新たに行った PWR 周辺での検出器出力測定実験結果の解析にも応用できるよう、PWR 由来のニュートリノ束の計算も行われた。

先行研究では原子炉の燃焼計算を通して原子炉内のベータ崩壊核種全てから放出されるニュートリノのエネルギースペクトルを計算した^[27]。燃焼計算では連続エネルギーモンテカルロ燃焼計算コード MVP-BURN を用いた。必要な核データは JENDL-3.3 を利用した。PWR は典型的な体系、パラメータを用いて、ウラン 235 の濃縮率が 2.0、3.5、4.1% の 3 種類を燃料として配置し、1 年間 3.4 GWth の燃焼計算を行った。燃焼計算を用いて計算された各ベータ崩壊核種の原子炉内の収量をもとに次の式を用いてニュートリノのエネルギースペクトルが計算された。

$$P(E_\nu)dE_\nu = \frac{Y}{f} F(Z, E_\beta) \left\{ (E_{\beta\max} - E_\nu)^2 - m_e^2 c^4 \right\}^{\frac{1}{2}} E_\nu^2 (E_{\beta\max} - E_\nu) dE_\nu \quad (1.24)$$

$$f = \frac{2\pi^3 \hbar^7 c^6}{C_\nu^2 |M|^2}$$

$$= \int_0^{Q-m_e} F(Z, E_\beta) \left\{ (E_{\beta max} - E_\nu)^2 - m_e^2 c^4 \right\}^{\frac{1}{2}} E_\nu^2 (E_{\beta max} - E_\nu)$$

$$E_{\beta max} \approx Q + m_e c^2$$

ここでは $Y, E_\nu, m_e, C_\nu, M, Q$ はそれぞれ、原子核の収量、ニュートリノエネルギー、電子質量、相互作用強度定数、遷移行列要素、反応の Q 値である。 $F(Z, E_\beta)$ はフェルミ関数で、崩壊の際の原子核からのクーロン力の影響を考慮するための関数である。

MVP-BURN による原子核収量計算と上式を用いて計算された ATR から 18 m および PWR から 26 m の位置におけるニュートリノのエネルギースペクトルを図 1-5 に示す。スペクトルの 100 keV 以下を拡大したものを図 1-6 に示す。結果として、総ニュートリノ束は PWR(26 m)の方が約 3 倍高いことが明らかになった。しかし 20 keV 以下の領域のみは ATR の方でニュートリノ束が高くなっている。これは ^3H (18.6 keV)や ^{241}Pu (20.8 keV)等の低エネルギーベータ線を放出する核種に由来するものである。低エネルギー核種は他にも ^{103}Ru (22.6 keV)や ^{151}Sm (77 keV)等があるが、収量として ^{241}Pu よりも 1~2 桁少ないためほぼ無視できる。

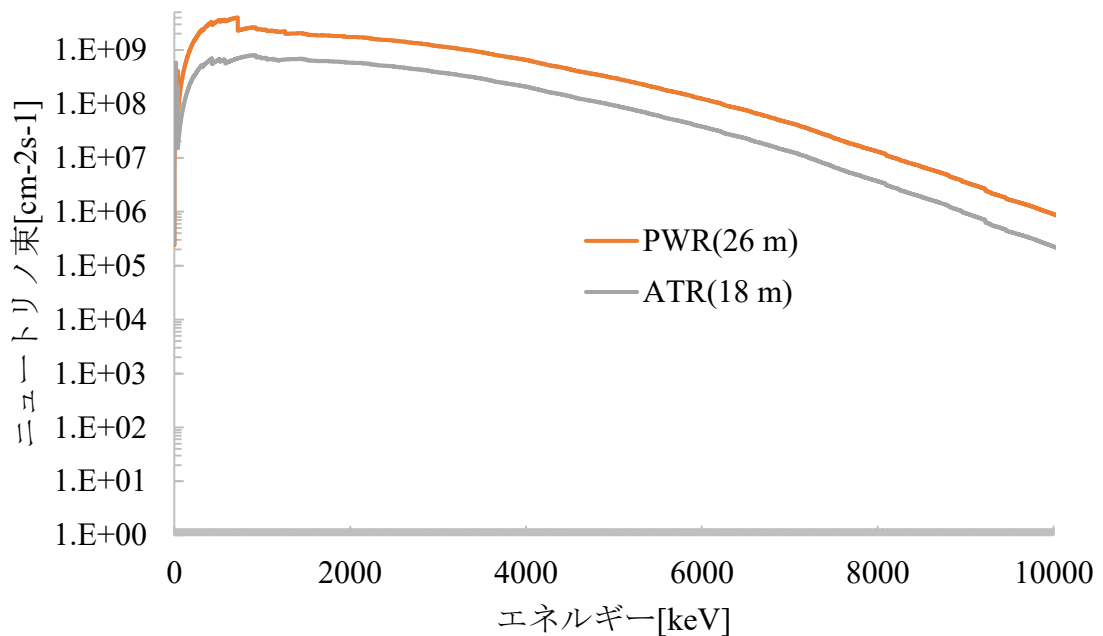


図 1-5 ATR 炉心から 18 m および PWR 炉心から 26 m の位置でのニュートリノ束のエネルギースペクトル計算結果。縦軸は対数表示にしている。総ニュートリノ束は PWR の方が約 3 倍高い結果となった。

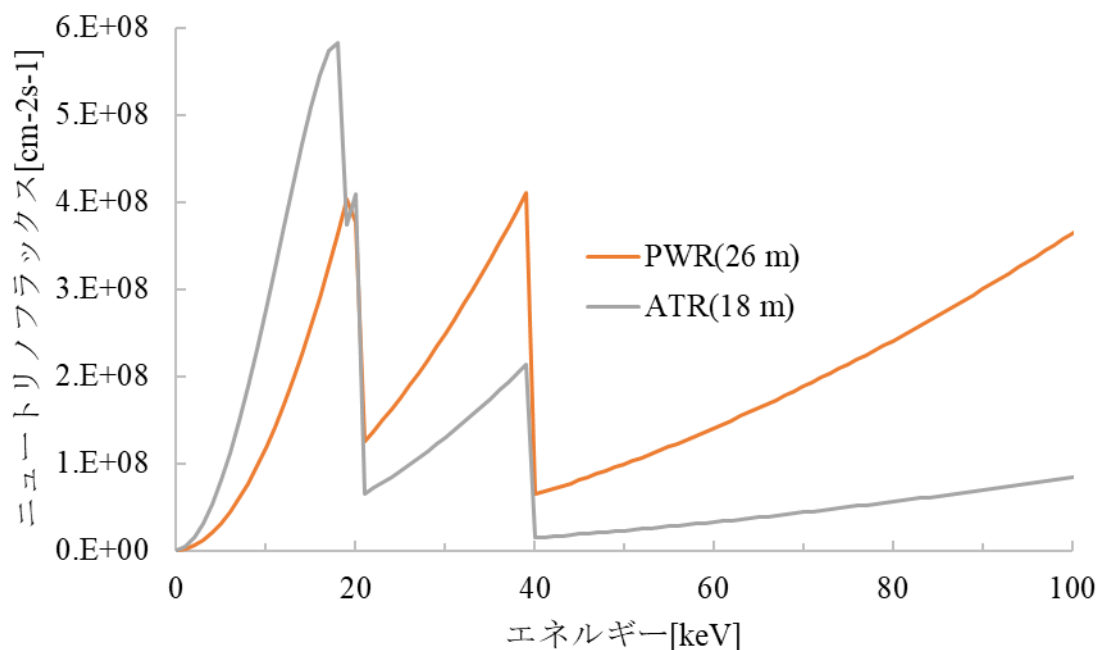


図 1-6 エネルギースペクトル計算結果の 100 keV 以下拡大図。約 20 keV 以下ならば ATR の方がニュートリノ束が高い。

1.2.4. 生糸の替りに他の繊維を用いた実験

本実験では生物由来物質である生糸の替りに人工繊維を使って検出器を組み立てた場合の出力信号を測定している。生糸の場合と比較した結果を図 1-7 に示す。

生糸を使った検出器では 1.2.1 項と同様の特徴的な出力増加曲線が現れたが、ナイロン、ポリエステルを使った検出器ではそれが現れなかった。この結果から特徴的な出力信号増加曲線は生糸を組み込んだ検出器特有のものであることが明らかになった。現在本研究グループで検出器に使用している生糸は経験的に得られた生物由来物質である。生糸の他にも同じように特徴的な出力電流曲線が現れる物質が存在する可能性もある。

出力電流の初期ドリフトについて、ナイロンを使った検出器出力は測定開始してから 10 日後まで緩やかに下がっているが、これは生成水中の不純物の酸化還元反応によるものだと考えられ、出力電流が 0 nA まで低下した後は上昇しない。ポリエステルでも同様で、初期ドリフトのみが存在しており 0 nA まで低下している。このことから、初期ドリフトは検出器における本質的な信号ではないことが明らかになっている。また、生糸を組み込まなければ初期ピークは現れないことから、生糸からのイオン類の溶出が示唆される。

生糸が弱い相互作用に関連して、検出器出力電流の生成に関わっているとすると、生

物由来物質に含まれるベータ崩壊核種であるカリウム 40 が関与している可能性がある。

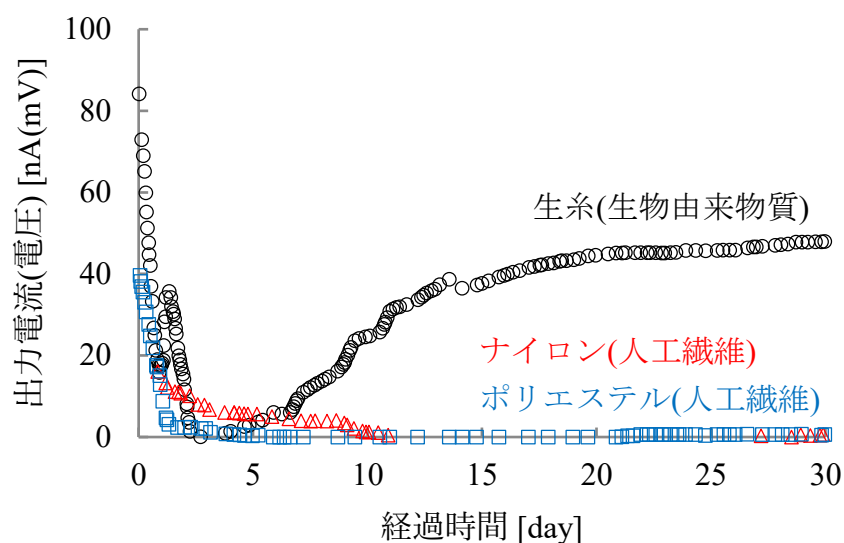


図 1-7 3 種類の繊維を検出器に組み込んだ時の出力の比較。生物由来物質である生糸を組み込まない場合、検出器出力信号が 0 nA となった。

1.2.5. 長期間に渡る出力信号測定実験

長期間検出器を稼働させた場合の出力信号測定結果を図 1-8 に示す。

この実験で出力信号は時間を経るごとに上昇し、約 1 年半後に 90 nA 程度まで達することがわかった。外部からエネルギーが供給され続けていることが示唆される。

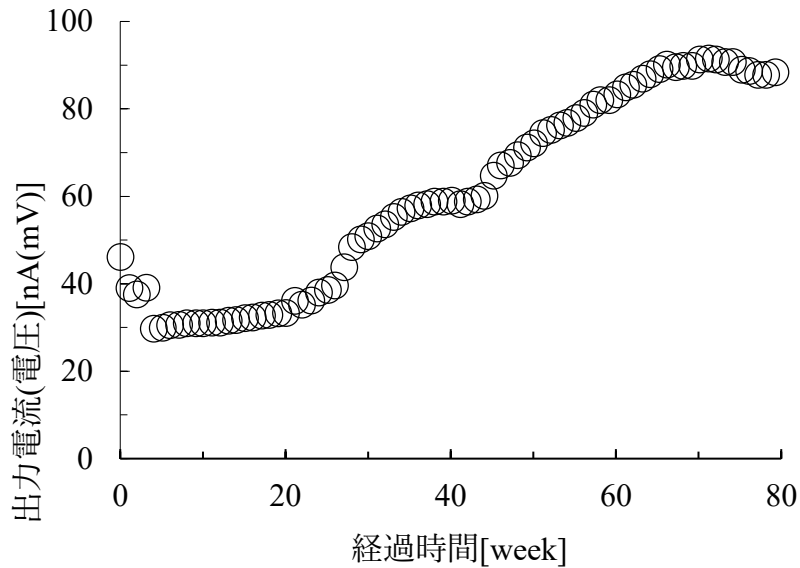


図 1-8 長期間の出力電流測定実験の結果。約 1 年半にわたって検出器出力電流が流れ続けた。

1.2.6. 溶存酸素濃度測定実験

検出器内で酸化還元反応によって酸素の消費や生成が起こっていることが示唆されていたため、溶存酸素濃度を測定する実験が行われた。本実験にはメトラートレド社の MO-128 という溶存酸素計が用いられた。この測定器はプローブ部の径が 1 cm 以下であったため 2.2 節で述べる特別な検出器を用いる必要はなく、通常検出器の蓋のみを変更して実験が行われた。測定点は 2.2 節で示す位置よりも約 5 mm 還元電極に近い位置であった。なお MO-128 は電圧ロガーが附属していなかったため測定データは自動記録ではなかった。このため記録感覚がまばらになっている。実験結果を図 1-9 に示す。

本実験によって検出器内の、特に酸化電極付近で酸素生成反応が起こっていることが示唆された。ただし、測定は 1 度しか行われなかったため、実験の再現性が確認されていなかった。また、測定点が 1 点のみだったため検出器内の酸素濃度分布は明らかになっていなかった。

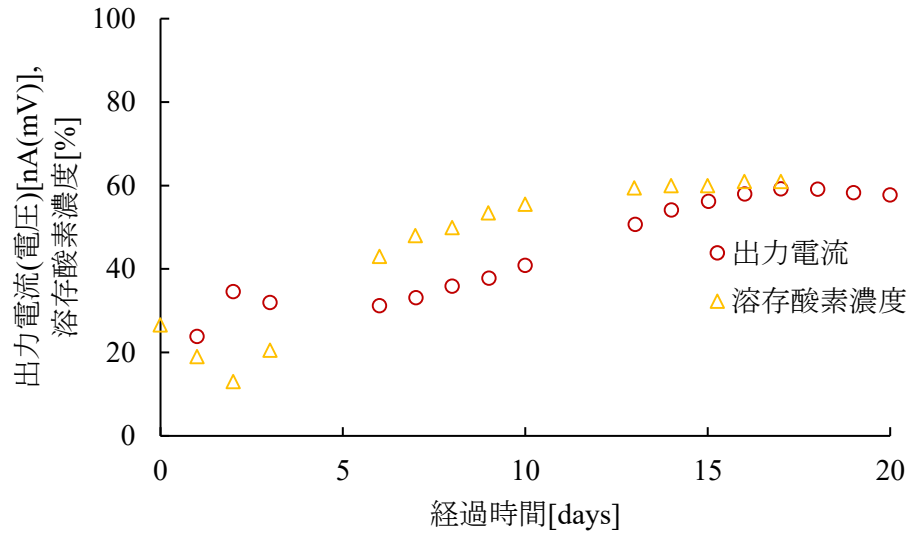


図 1-9 溶存酸素測定実験の結果。酸化電極側で酸素生成反応が起っていることが明らかになった。

1.2.7. 温度変化による出力信号への影響

本実験は検出器出力電流の温度依存性を確かめるために行われた。通常の実験は温度を 300K に保って行っているが、本実験では 280K、290K、300K、310K の 4 つの温度で行われた。恒温槽の設定温度はセ氏 40 度までであり、その範囲内で実験が行われた。実験結果を図 1-10 に示す。

化学反応に起因する電流は一般的にバトラー・ボルマーの式で説明できるが反応物の活量、電極電位、移動係数、内部抵抗が温度に依存しない場合は

$$I \propto \exp\left(-\frac{\Delta G}{k_B T}\right) \quad (1.25)$$

となる。 $\Delta G, k_B, T$ は反応の活性化エネルギー、ボルツマン定数、温度(K)である。両辺に自然対数をとると

$$\ln I \propto -\frac{\Delta G}{k_B T} \quad (1.26)$$

となり、電流に対数をとった値が温度の逆数に比例することがわかる。この関係をグラフにしたものはアレニウスプロットと呼ばれる。

280K のデータ以外の 3 つの出力安定値に対数をとったものを温度の逆数に対してプロットしたものを図 1-11 に示す。3 つの実験点が相関係数 0.92 程度の直線上にあることがわかった。

アレニウスプロットから反応の活性化エネルギーが 0.65eV と決定された。この値は水分子生成の化学反応に関わるエネルギーのオーダーである $1.2 - 0.4 = 0.8$ eV 程度と矛盾せず、電気化学として妥当な値である。活性化エネルギーを決定したことにより出力の温度依存性が明らかになり、検出器動作温度の最適化が期待された。280K のデータは温度が低すぎて検出器の正常稼動温度を下回っていたと考えられる。

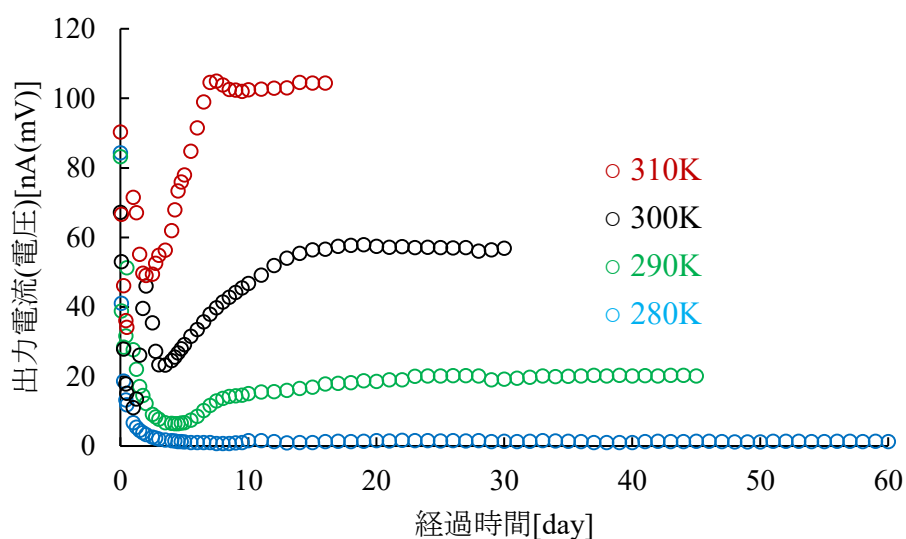


図 1-10 検出器の温度を変化させた場合の出力測定実験結果。高温なほど出力信号が大きい一方、280K では出力電流がほぼ零になっている。

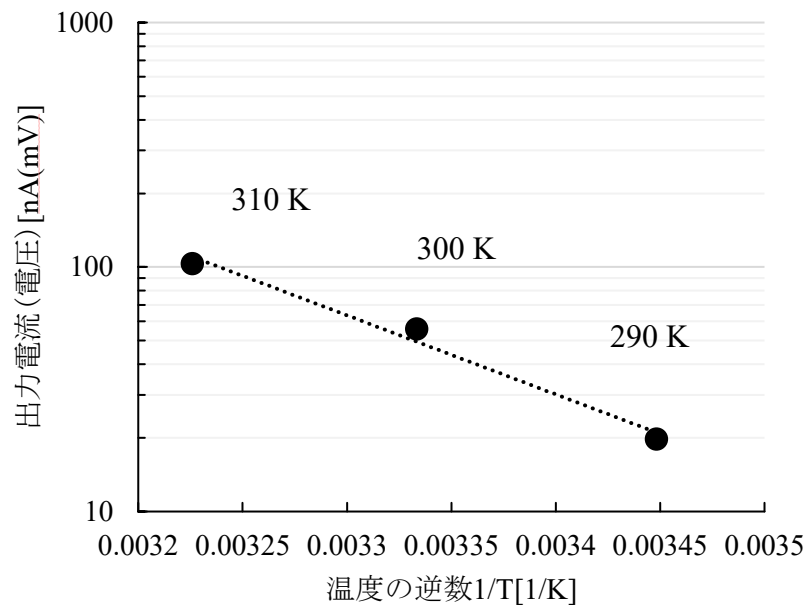


図 1-11 アレニウスプロット。温度の逆数に対して電流の対数をとった値をプロットしたとき、その傾きが反応の活性化エネルギーになる。この図では傾きから 0.65eV と見積もられた。

1.3. 検出器出力信号の特性

以上の実験事実から、検出器に生糸を組み込まなければ、特徴的な出力信号増加曲線が現れないことおよび、原子炉の近くに設置すると検出器出力信号が増大することが明らかになった。これらの現象は一般的な電気化学では説明できない。原子炉由来の、弱い相互作用に関係した反応が、検出器内で起こっていることが示唆される。しかし一般的にニュートリノの相互作用断面積は非常に小さく、電弱理論では先行研究の実験結果を説明できない。この実験データが確かに弱い相互作用に関連するものであれば、2 体間の散乱現象を記述する電弱理論の適用範囲外の現象における弱い相互作用の取り扱いが必要になる。その取り扱いは、ニュートリノ振動現象の適用などの問題点も同時に解決できることが望ましい。

1.4. ニュートリノの内部運動存在の可能性

前節の実験結果から、検出器が弱い相互作用の影響を受けていることが示唆されたが、

これは現在の電弱理論における弱い相互作用の取り扱いでは説明できない。本研究グループの実験データを矛盾なく説明できるように、ニュートリノ内部粒子の運動を想定して次の5つのことを仮定して、電弱理論の適用外の反応の記述を試みている。

- (1) 電弱理論に整合するニュートリノの内部粒子数
- (2) V型運動だけでなく AV型運動も考慮したディラック方程式
- (3) ガンマ行列の座標変換特性に起因する質量生成場の出現
- (4) ファインマンゲージに基づくオンシェルの伝播関数
- (5) ニュートリノ粒子系が単一粒子に見える条件および相対論的速度の制約とゲージボソンの質量に整合するラグランジュの未定乗数

1.4.1. ニュートリノの内部構成粒子

電弱理論において、ニュートリノは内部構造を持たない素粒子として取り扱われている。このため波動関数はディラック平面波解を用いることができる。また、相互作用において V型ガンマ行列の他に AV型ガンマ行列も合わせて使用し、V-AV型の相互作用カレントを用いている。このためニュートリノ自身の波動関数自体には AV型の運動を考慮する必要がない。相互作用は群論のフレームで議論し、超電荷と左巻き弱アイソスピン系に対応して、 $U(1) \times SU(2)$ 群でのゲージ不変性を保っている。また、ニュートリノの極めて小さな相互作用断面積を説明するために、ヒッグス機構を通して相互作用媒介粒子に重い質量を与えている。ニュートリノの相互作用は主に、ワインバーグ角 $\sin^2 \theta_W = 0.231$ [28]、2つの相互作用媒介粒子 W ボソン(80 GeV)、Z ボソン(91 GeV)の質量の計3つのパラメータで記述されている。

ワインバーグ角から、 $U(1)$ の部分に対応する結合定数は $g = e / \cos \theta_W = 1.14e$ 、 $SU(2)$ に対応する結合定数は $g' = e / \sin \theta_W = 2.08e$ である。超電荷の大きさが電磁相互作用における結合定数 e に等しいと考えると、 $g = 1.14e < 2e, g' = 2.08e < 3e$ の関係から、本研究グループではこれらに対応した5種類のニュートリノ内部粒子の存在を推定している。この内2種類は $U(1)$ すなわち超電荷型に対応した粒子で、3種類は $SU(2)$ すなわち弱アイソスピンの左巻き粒子系に対応した超電荷モーメント型の粒子である。これらの内部粒子は、全て電弱理論での取り扱いのようにディラック方程式に従うと考えられるため、質量に正と負の2つの極性を持つことができる。5つの内部粒子の特性を表 1-2 にまとめる。

表 1-2 5つのニュートリノ内部粒子の特性。この内2種類が超電荷型(U(1))粒子、3種類が左巻き粒子系に対応した超電荷モーメント型(SU(2))の粒子である。

	超電荷型	超電荷モーメント型
正質量	ν_1	ν_0, ν_3
負質量	ν_{-1}	ν_2

各構成粒子の質量 m_ν は、V型およびAV型の運動を含むディラック方程式の4×4行列(時間1+空間3次元の4次元)の固有値として規定される。この固有値を求めてみると、質量が実数のスカラー量になるためにはV型およびAV型の運動の時間方向成分が打ち消されてしまう必要があることが分かる。本研究グループではガンマ行列の役割を拡張して、通常空間 U^c からニュートリノ系の固有空間 U^ν への座標変換の特性を持つと仮定して、ヒッグス場のような質量生成場の生成を説明している。 U^c での空間運動の一部が U^ν における時間成分に変換された形で出現し、共変性に違いが生じる。例えばガンマ行列 γ^ν が運動量 p^μ を U^c から U^ν へ変換する場合、 U^c の空間運動量 $\mu \geq 1$ がの一つが行先の U^ν では時間方向運動量 $\mu = 0$ と作用することになり、共変性に影響を与える場合がある。 U^c における運動量 p^{κ_ν} が U^ν における時間成分運動量 $p^{0(\kappa_\nu)}$ に変換される場合の対応は、 $\nu = 0, 1, 2, 3$ に対応して $\kappa_\nu = 0, 3, 3, 2$ となる。

通常の電磁相互作用において補助場は

$$B_X = -\partial_{\mu,X} A_X^\mu \quad (X = V, AV)$$

と定義される^[28,29]が、補助場という名の通り、実際の相互作用には作用しない場である。一方、AV型の κ_ν 方向のポテンシャルは時間の特性を持つことになり、時間方向に補助場とは異なる作用場

$$B_{\text{revA}} = -\partial_{\kappa_\nu, A} A_A^{0(\kappa_\nu)} / i \quad (1.27)$$

を生成する。この κ_ν 方向の運動は U^ν だけでなく U^c においても B_{revA} と結合することができる。この結果、実空間における実エネルギーを生成でき、このエネルギーがニュートリノ内部粒子の質量になると考えることができる。 B_{revA} は $U(1) \times SU(2)$ のフレームの中で定義され、内部粒子の質量生成を担っているという点から、質量生成場 B_H と書く。この質量生成機構の仮定によって、電弱理論の延長線上でニュートリノの質量を説明することが可能になる。

また、ニュートリノ系内の内部粒子の振動的な運動を調べて、内部運動に起因するニュートリノの振動現象が説明することが期待される。これはPMNS行列による表現とは

異なり、内部運動の立場から説明するニュートリノ振動現象となる。定量的な議論によって、実際のニュートリノ振動の振動距離と整合することが明らかになれば、上記の質量生成機構の妥当性を示唆することになるであろう。

内部粒子運動の基本的な定式化は以下のように行っている。ニュートリノ内部粒子系のラグランジアン密度は、各構成粒子の総和として

$$\mathcal{L} = \sum_{\nu} \mathcal{L}_{\nu} \quad (1.28)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{\nu} = & \bar{\psi}_{\nu} \{ (i\gamma^{\mu} D_{\mu, V\nu}) + \gamma^5 (i\gamma^{\mu} D_{\mu, A\nu}) - m_{\nu} \}_{kin} \psi_{\nu} \\ & + \{ -F_{\mu\pi, V\nu} F_{V\nu}^{\mu\pi} / 4 + (B_{V\nu})^2 / 2 + B_{V\nu} \partial_{\mu} A_{V\nu}^{\mu} \}_{potV} \\ & + \{ -F_{\mu\pi, A\nu} F_{A\nu}^{\mu\pi} / 4 + (B_{A\nu})^2 / 2 + B_{A\nu} \partial_{\mu} A_{A\nu}^{\mu} \}_{potA} \end{aligned} \quad (1.29)$$

と表される。ここで、共変微分は以下の通りである。

$$D_{\mu, V\nu} = \partial_{\mu, V\nu} + Q_{\nu} i A_{\mu, V\nu} \quad (1.30)$$

$$D_{\mu, A\nu} = \begin{cases} \partial_{\mu, A\nu} + Q_{\nu} i A_{\mu \neq \kappa_{\nu}, A\nu} & \mu \neq \kappa_{\nu} \\ \partial_{\kappa_{\nu}, A\nu} + Q_{\nu} d_{\nu} i B_{revA\nu} & \mu = \kappa_{\nu} \end{cases} \quad (1.31)$$

本定式化は、フィンマンゲージを基にしているのでゲージ不変な議論ではない。共変微分のなかに導入した d_{ν} は、構成粒子を特徴づける長さであるが、質量の関数として一意的に決めることができるのでローレンツ変換の不変性が確保できる。(1.30)式ではV型の共変微分のため、質量生成場との結合項が存在しない。ガンマ行列に関連して、上記のラグランジアン運動項の固有値が構成粒子の質量 m_{ν} となる。 U^{ν} で時間成分によって、 κ_{ν} 方向の $p_{V\nu}^{\kappa_{\nu}} - Q_{\nu} A_{V\nu}^{\kappa_{\nu}}$ と $p_{A\nu}^{\kappa_{\nu}}$ の2乗量が打ち消しあうことが要請されるため、質量二乗量は結局

$$(m_{\nu})^2 = -(Q_{\nu} d_{\nu} B_{revA\nu})^2 \equiv (Q_{\nu} d_{\nu} B_H)^2 \quad (1.32)$$

の部分が残る。

また(1.29)式のポテンシャル部分のラグランジアンにおけるV型とAV型のエネルギーとしてAV型スピンによる磁場エネルギー、すなわち自己エネルギー $E_{A\nu}^{spin}$ を生成する。このため、ラグランジアンの中で

$$|m_{\nu}| = E_{A\nu}^{spin}$$

の関係が要請される。構成粒子は全て、V型の運動とともにAV型の運動も含むディラック方程式に従う。そこで、(1.30)式および(1.31)式の共変微分を用いると内部粒子の運動が従う方程式は

$$\{(i\gamma^\mu D_{\mu,V\nu}) + \gamma^5(i\gamma^\mu D_{\mu,A\nu}) - m_\nu\}\psi_\nu = 0 \quad (1.33)$$

となる。同式において、質量 m_ν が行列の固有値として単位行列のスカラー量となるためには、質量 m_ν が時間方向の特性を持つとして $\gamma^0 m_\nu$ の形で含まれる必要がある。そこで、両辺に左から γ^0 をかけて次の方程式を得る。

$$\{(i\gamma^0\gamma^\mu D_{\mu,V\nu}) + (i\gamma^0\gamma^5\gamma^\mu D_{\mu,A\nu}) - \gamma^0 m_\nu\}\psi_\nu = 0 \quad (1.34)$$

結局、上記の式によって定義される 4×4 行列の固有値から質量が規定され、その構成粒子の質量の総和

$$m_s = \sum_\nu m_\nu$$

としてニュートリノの質量和が決定される。前述のように m_ν は正と負の極性を持つ。構成粒子の超電荷の線形和が e に等しくなることから、超電荷 e を用いて

$$Q_\nu = e \frac{m_\nu}{m_s} \quad (1.35)$$

で与えられる。

ニュートリノは内部粒子を持ち、その内部運動はこれまで説明した線形の式に従うとしたが、ニュートリノ系全体の質量が一つの単体として構成されているように見えるには、次の条件が必要になる。

$$m_s = \sqrt{\sum_\nu (m_\nu^{\text{int}})^2 (\dot{x}_{k,V\nu} \dot{x}_{V\nu}^k - \dot{x}_{k,A\nu} \dot{x}_{A\nu}^k)} \quad (1.36)$$

ここで、ニュートリノ系の内部質量は、実数もしくは虚数の内部質量 m_ν^{int} としている。一方、相対論の関係

$$E^2 = p^2 + m^2$$

から

$$\left(\frac{E}{m}\right)^2 - \left(\frac{p}{m}\right)^2 = 1$$

$$\therefore (p^0)^2 - (p^k)^2 = 1$$

であることが知られている。そこで、V型が時間の特性、AV型が空間の特性を持つことに対応するので、

$$\dot{x}_{k, V\nu} \dot{x}_{V\nu}^k - \dot{x}_{k, A\nu} \dot{x}_{A\nu}^k = 1 \quad (1.37)$$

の成立が要請される。この関係を入れると、

$$(m_s)^2 = \sum_{\nu} (m_{\nu}^{\text{int}})^2 \quad (1.38)$$

と表現できる。 m_{ν} と m_{ν}^{int} の間には

$$m_{\nu} = \frac{(m_{\nu}^{\text{int}})^2}{m_s} \quad (1.39)$$

の関係がある。

ニュートリノの総エネルギーは、(1.29)式のV型、AV型運動の虚数成分をすべて実数に直して現実のエネルギーにもどす。(1.39)式のディラック方程式型の質量を使うと、次式で表現できる。

$$E = \sqrt{\sum_{\nu} \left| \frac{m_s}{m_{\nu}} \right| \left\{ \begin{array}{l} (p_{V\nu}^k - eA_{V\nu}^k)(p_{V\nu}^k - eA_{V\nu}^k) \\ + (p_{A\nu}^{k\neq\kappa_{\nu}} - eA_{A\nu}^{k\neq\kappa_{\nu}})(p_{A\nu}^{k\neq\kappa_{\nu}} - eA_{A\nu}^{k\neq\kappa_{\nu}}) \\ + (p_{A\nu}^{\kappa_{\nu}})^2 + (Q_{\nu} d_{\nu} B_H)^2 \end{array} \right\}} \quad (1.40)$$

と書かれる。

内部粒子の運動は上式を古典的なハミルトニアンとみなす正準方程式から導出される。このときの計算においては相対論の関係による制限を頭に書いたラグランジュの未定乗数法を用いて行う。このとき未定乗数は

$$\left\{ \begin{array}{l} \lambda_{\nu}^{(1)} \{ \dot{x}_{V\nu}^k \dot{x}_{V\nu}^k - \dot{x}_{A\nu}^k \dot{x}_{A\nu}^k - 1 \}_{k=\kappa_{\nu}} \\ \lambda_{\nu}^{(2)} \{ \dot{x}_{V\nu}^k \dot{x}_{V\nu}^k - \dot{x}_{A\nu}^k \dot{x}_{A\nu}^k \}_{k\neq\kappa_{\nu}} \end{array} \right. \quad (1.41)$$

となる。図 1-12 に示すようなファインマン図で表される相互作用を考える。ファインマンゲージを使用しているため伝播関数の分母に交差項が現れず、運動量移行にオンシェル状態を仮定すると次のようになる。

$$Q_\pi \frac{1}{q_V^k q_V^k - q_A^k q_A^k} Q_\nu = Q_\pi \frac{1}{m_s^2} e \quad (1.42)$$

ここでは

$$Q_\nu = e \frac{m_\nu}{m_s} \quad (1.43)$$

$$q_V^k q_V^k - q_A^k q_A^k = (m_\nu^{\text{int}})^2 = m_\nu m_s \quad (1.44)$$

である。このときのニュートリノの質量 m_s と未定乗数 $\lambda_\nu^{(1)}$ の積が Z ボソンの質量程度になると考えられる。後述の計算では、未定乗数を固定し、ニュートリノの質量と Z ボソンの質量から算出される値を使用する。

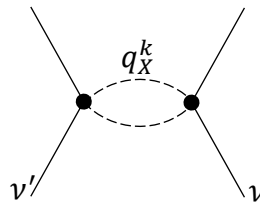


図 1-12 2つの構成粒子間の運動量交換 $q_{X=V,AV}^k$ を介した相互作用のファインマン図

ここまでのニュートリノ内部粒子運動の定式化を用いて計算された内部粒子の運動の計算例を示す。この計算は反電子ニュートリノ 3MeV の場合に実験室系で見た振動の周期が 100 km となる例であり、KamLAND 実験で得られる振動距離に相当する。運動の空間的な変化を図 1-13 に示す。粒子 ν_1, ν_{-1} および粒子 ν_0, ν_2 がそれぞれ対になって重心位置付近を中心として振動的に運動している。原子炉周辺などの B_H の強い場では質量が増大し、振動距離が小さくなっている。図 1-13 では重心付近での振動的な振舞を見やすくするために変位の桁を調整して表示しているため、縦軸と横軸の桁数が異なっており、粒子 ν_3 の運動も表示されていない。 ν_3 は他の内部粒子の作る B_H から影響を受けて質量を作ることができないため、1つのほぼ独立した運動をしている。

一方、Daya-Bay、RENO、D-Chooz 実験での振動距離に相当する反電子ニュートリノ 3 MeV の場合の振動距離 3 km に対応した内部粒子の振動も解として存在する。この計算例を図 1-14 に示す。この図でも図 1-13 と同様の振動的な振舞がある。

これらの 100 km および 3km の振動距離に対応した内部粒子の振動運動の計算には、それぞれ 1 つの調整パラメータが必要とされる。このパラメータはニュートリノ系の外部に自然に存在する質量生成場 B_H の値である。粒子 ν_3 は値の小さい y 方向運動で質量相互作用をして、他の内部粒子との相互作用で質量を生成できないため、外部の B_H から規定される質量を生成していると考えられる。振動距離 100 km の場合、自然に存在する B_H は、磁場の単位で表現すると 2.18 ガウスであり、振動距離 3 km の場合は原子炉に近いのでその B_H よりも 10 倍大きい値に設定している。そこで、ニュートリノ振動の解析から原子炉近くで B_H が大きく、ニュートリノの質量が増大していることが示唆される。このことから、先行研究で原子炉 ATR の炉心の傍で得られた検出器の信号増大は、炉心の付近の大きな B_H に起因する可能性がある。

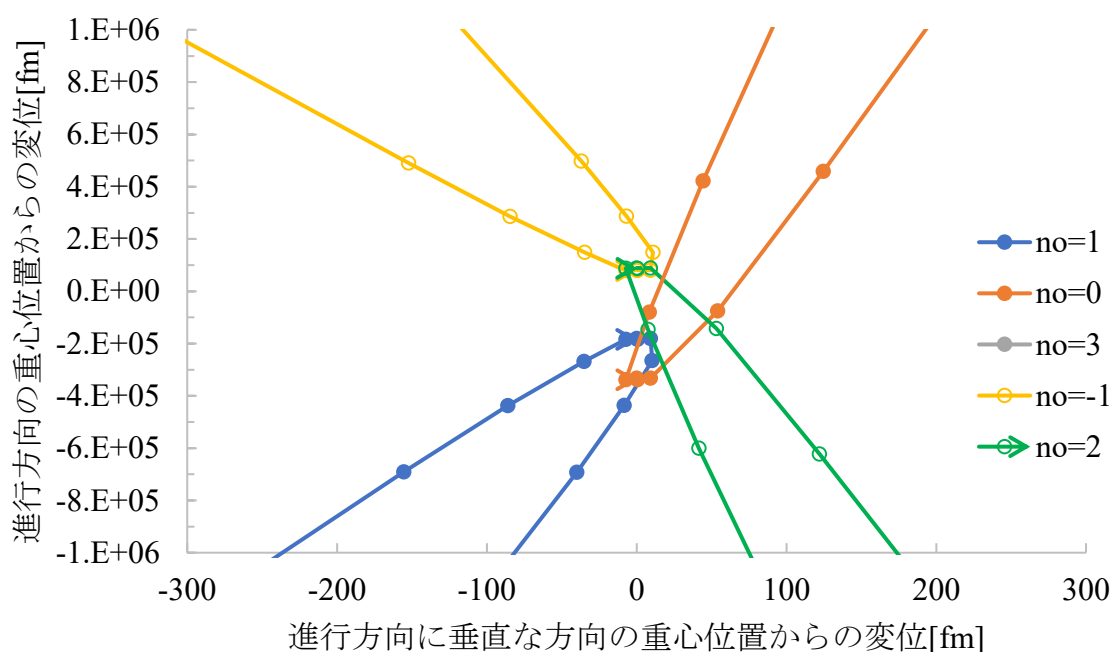


図 1-13 振動距離約 100 km に相当するニュートリノ内部粒子の運動の計算例。縦軸は進行方向(z)の重心位置からの変位、横軸は進行方向に垂直な方向(y)の重心位置からの変位を表している。粒子 ν_1, ν_{-1} および粒子 ν_0, ν_2 がそれぞれ対になって、重心位置付近を中心として振動的に運動している。

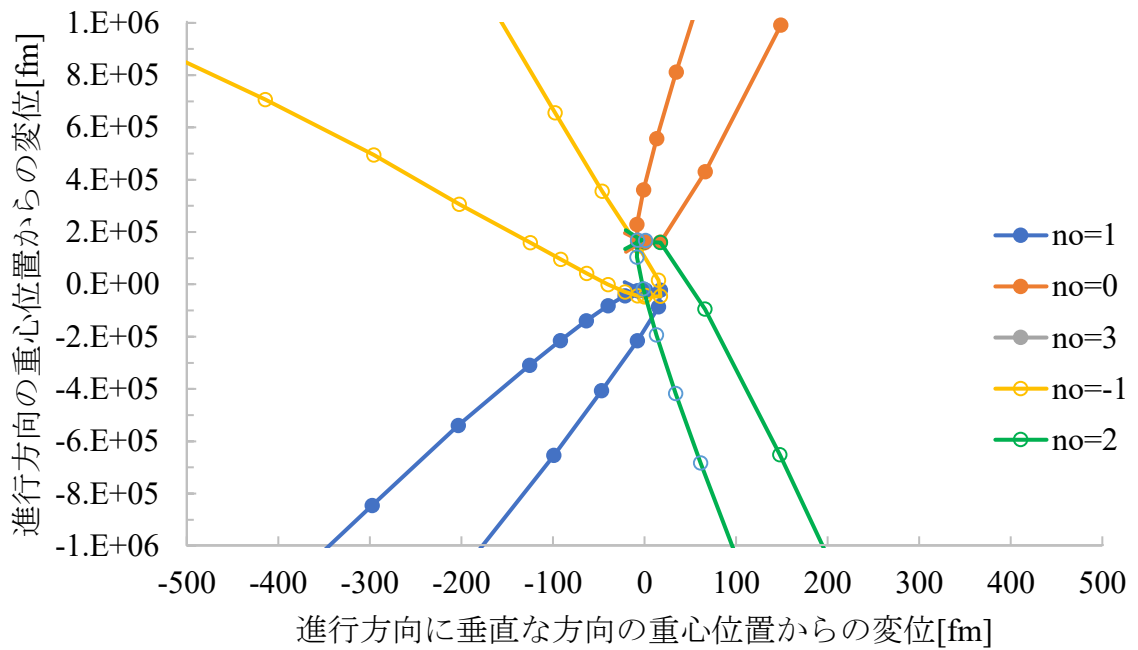


図 1-14 振動距離 3 km に相当するニュートリノ内部粒子の運動の計算例。

運動中の質量の変化を図 1-15 に示す。内部粒子が z 軸上に集合した場合に結合エネルギーが最も大きくなり、速度が最も速くなる。内部粒子運動によって、運動中に質量も振動的に変化している。原子炉周辺などの B_H の強い場では質量が増大し、振動距離が小さくなっていると理解される。

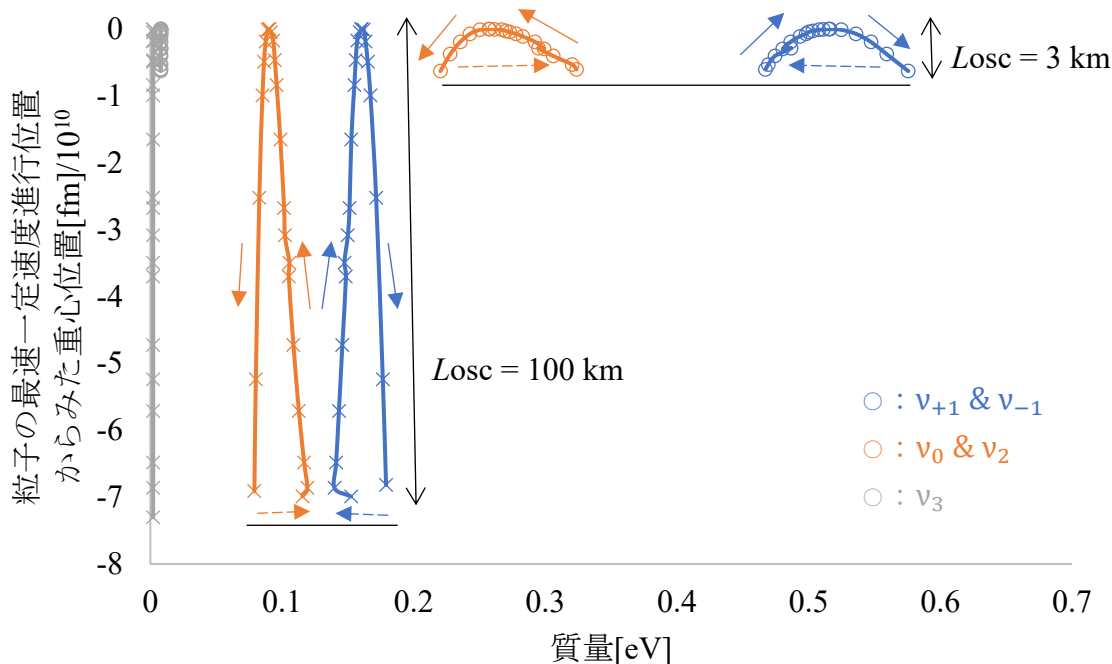


図 1-15 振動距離 100 km 及び 3 km に相当するニュートリノ内部粒子の質量の変化。内部粒子が z 軸上に集合した場合に結合エネルギーが最も大きくなり、速度が最も速くなる。縦軸は、粒子が最速で一定速度進行する場合の位置からみた重心位置を示す。内部粒子運動によって、運動中に質量も振動的に変化している。原子炉周辺などの B_H の強い場では質量が増大し、振動距離が小さくなっていると理解される。

1.4.2. 内部構造を持つニュートリノと結合する可能性のある付加粒子

ニュートリノ内部の構成粒子は、重いボソンが媒介する短距離相互作用ではなく、電磁相互作用に近い軽いボソン(ニュートリノ質量程度)に媒介される長距離の相互作用を行っているとして定式化された。そこで、前節のニュートリノ内部粒子は、長距離相互作用によって後述するフェルミ粒子 ξ と結合することが可能と考えられる。この粒子 ξ は、超電荷 1、V 型スピン 1/2、軌道角運動量 -1/2 を持つ粒子が候補になる。ニュートリノが惑星間を飛行するときなど質量生成場 B_H が小さい場合に、この ξ を生成・結合し、合成スピンがゼロの複合系 $\nu\xi$ を作り合成質量を調整してより安定になっている可能性がある。この場合、惑星間の磁場(V 型)中を飛行するとき、磁場に沿って飛行をされると考えられる。この V 型及び AV 型のスピン和がゼロで全角運動量が $-1/2$ の $\nu\xi$ の系を、以後は単に環境ニュートリノと呼称する。

通常のニュートリノの構成粒子の質量は質量生成場 B_H との結合によって作られると考えられるが、付加粒子 ξ はガンマ行列の座標変換に関わらないとする場合、その質量

は ξ 単体のヒッグス場との結合で生成されない。その代わりに、ニュートリノの他の構成粒子と結合してその質量に組み込まれると考えられる。これにはニュートリノの質量 m_s の変更を伴うため質量生成場 B_H が小さい場合でも安定な状態への移行が期待される。逆に B_H が大きな領域では ξ をなくして、通常のニュートリノ ν に戻ると思われる。

1.5. 先行研究の不足点と本研究の目的

先行研究の実験結果から、検出器が弱い相互作用場 B_H の影響を受けていることが示唆されていたが、その実験データは誤差が評価されておらず、信頼性が十分ではなかった。ATRはすでに廃炉措置に入っているため、本研究では新たに加圧水型原子炉(PWR)周辺における検出器出力信号測定実験を行い、前述の実験結果の再確認を行う。また、検出器出力信号の増大要因は、原子炉内に存在する放射性同位体のベータ崩壊で生成したニュートリノの入射によるもの、もしくは原子炉由来の弱い相互作用場(質量生成場 B_H)による影響の2つが考えられたが、特定には至っていなかった。そこで、単一のベータ崩壊核種からなる大強度トリチウム線源を用いた実験も実施する。本研究では検出器出力信号特性から検出器動作原理を推定し、それに基づいた出力信号の電気化学的解析を用いて、信号増大要因の特定と、信号増大に主に寄与するベータ崩壊核種の解明も試みる。

検出器の出力信号増大がトリチウムの量に起因するものだとすると、将来的に本検出器は、核融合炉に使用されるkgレベルのトリチウム燃料の非破壊モニタリグに利用できる可能性がある。特に本研究グループが使用している検出器は自発的な電気化学反応を利用しているため外部電源が不要であり、設置が容易な点で優れていると考えられる。また、信号生成に生物由来物質に由来する自発的な電気化学反応が重要な役割を果たしていることから、生化学物質内のタンパク質の重合等の生化学反応の促進も可能になることも期待される。

1.6. 本論文の構成

本研究では、生物由来物質を用いた電気化学的起電力生成装置(検出器)を使用して、基礎特性を調べるために出力信号測定実験を行い、検出器の出力信号特性を明らかにする。

第2章では、本研究グループで使用している検出器の構造および、検出器の特性を詳細に調べるために新たに行った実験について説明する。検出器では、内部の精製水内に酸化電極(金電極)および還元電極(炭素電極)が設置され、酸化電極の周りに生物由来物質

である生糸が配置されている。この生糸が出力信号生成に重要な役割を果たしており、出力信号は原子炉等に由来の弱い相互作用場から影響を受けて増大している可能性を想定している。生糸は繊維状のフィブロイン、膠状のセリシンの2種類のタンパク質から構成されるが、フィブロイン繊維のみで出力信号が生成するかどうかを調べる。また、検出器内で起こっている電気化学反応を考察するために酸化電極側と還元電極側で溶存酸素濃度測定実験を行い、酸化電極側では酸素生成反応が起こり、還元電極側では酸素消費反応が生成しており、濃度勾配に沿って酸素が拡散していることを示す。検出器溶液内の不純物イオンの定量分析も行い、出力信号測定開始後、約2日でほぼ全量の不純物イオンが、生糸表面から溶液内に溶出することを明確にする。

第3章では、検出器出力信号の増大効果を調べるためにPWRおよび大強度トリチウム線源を利用して行った実験について説明する。PWR炉心から距離26mの位置に複数の検出器を設置して実験を行い、誤差棒を含む出力信号増大効果のデータを取得する。また、トリチウム線源から距離8.6mの位置での実験においても出力信号増大効果が見られたが、その出力電荷生成率はトリチウムから放出される反ニュートリノ束による反応では説明できなかった。そこで出力信号増大は、原子炉やトリチウム由来の反ニュートリノ入射によって起こるのではなく、低エネルギーベータ崩壊核種が生成するヒッグス的な弱い相互作用場の影響下で環境ニュートリノの検出効率が上昇したかどうかを調べる。また、トリチウムから距離2.4m、8.6m、および16.8mの位置における同時測定によって、トリチウム線源から検出器までの距離に依存した出力信号増大効果が現れることを示す。

第4章では、想定する検出器の出力信号生成プロセスについて述べたのち、出力信号時間変化の電気化学的解析について説明する。通常電気化学反応に加えて、ボソン化した電子の介在を仮定して、出力信号の時間発展を矛盾なく説明することを試みる。また、電気化学的解析を通して、検出器信号がどの同位体に依存するかを調べる。原子炉において低エネルギーベータ崩壊核種は、存在量としてプルトニウム241が支配的だが、大強度トリチウム線源を用いた実験結果を合わせて解析して、トリチウムとプルトニウム241の相対的な寄与を調べる。トリチウムが信号生成に寄与する理由を考察する。

第5章では、本研究の結論および将来的な応用について述べる。

第2章 検出器出力信号基礎特性解明のための実験

本章では、まず最初に電気化学的起電力生成装置をはじめとする本研究に使用した機器および材料について説明した後、2.4 節以降は本研究で新たに行った実験について述べる。

2.1. 生物由来物質を利用した電気化学的起電力生成装置の概要

本研究の実験では、生物由来物質を利用した電気化学的起電力生成装置(検出器)の出力信号を測定した。検出器に組み込まれている生物由来物質は生糸であり、これは精練する前の絹糸である。検出器内で起こる電気化学的反応に起因する電流を抵抗器に流して、電圧として出力信号を得る。電流は 100 nA、抵抗器は 1 M Ω のオーダーであるため、出力信号電圧は最大 100 mV 程度が典型的な値となる。検出器の構造を図 2-1 に示す。

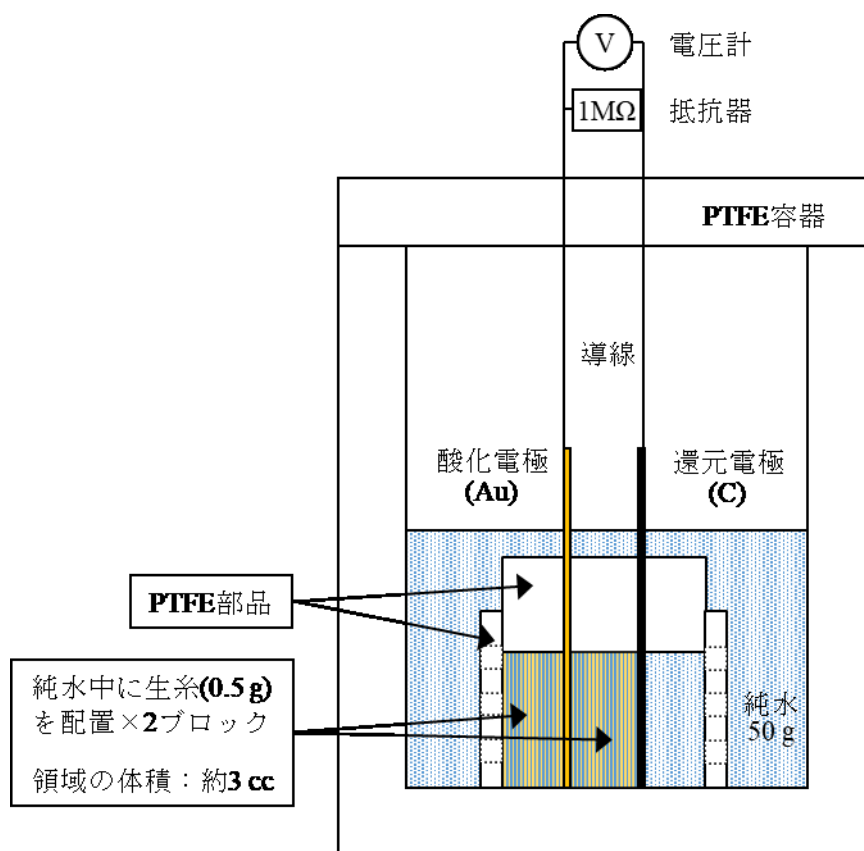


図 2-1 検出器の概要図。

テフロン(PTFE、ポリテトラフルオロエチレン)製容器は外径 58 mm、高さ 90 mm の円筒形である。テフロン製容器の内部は、形状の異なる 6 種類のテフロン製部品と、精製水、生糸、アクリル製ネジ、銅製の導線(熱収縮チューブ被覆)、電極として使用する金版、炭素版、そして導線と各電極をつなぐ金メッキされた真鍮ワニロクリップによって構成されている。電極として金と炭素を用いているのは、これらの電極が化学的に安定であり、余分な酸化還元反応に直接関わりにくいためである。金電極は水素過電圧が小さく、酸素過電圧が大きいため酸化反応電極に適しており、炭素は水素過電圧も酸素過電圧も大きいため汎用性が高い^[30]。検出器を構成する部品の写真を図 2-2 に示す。

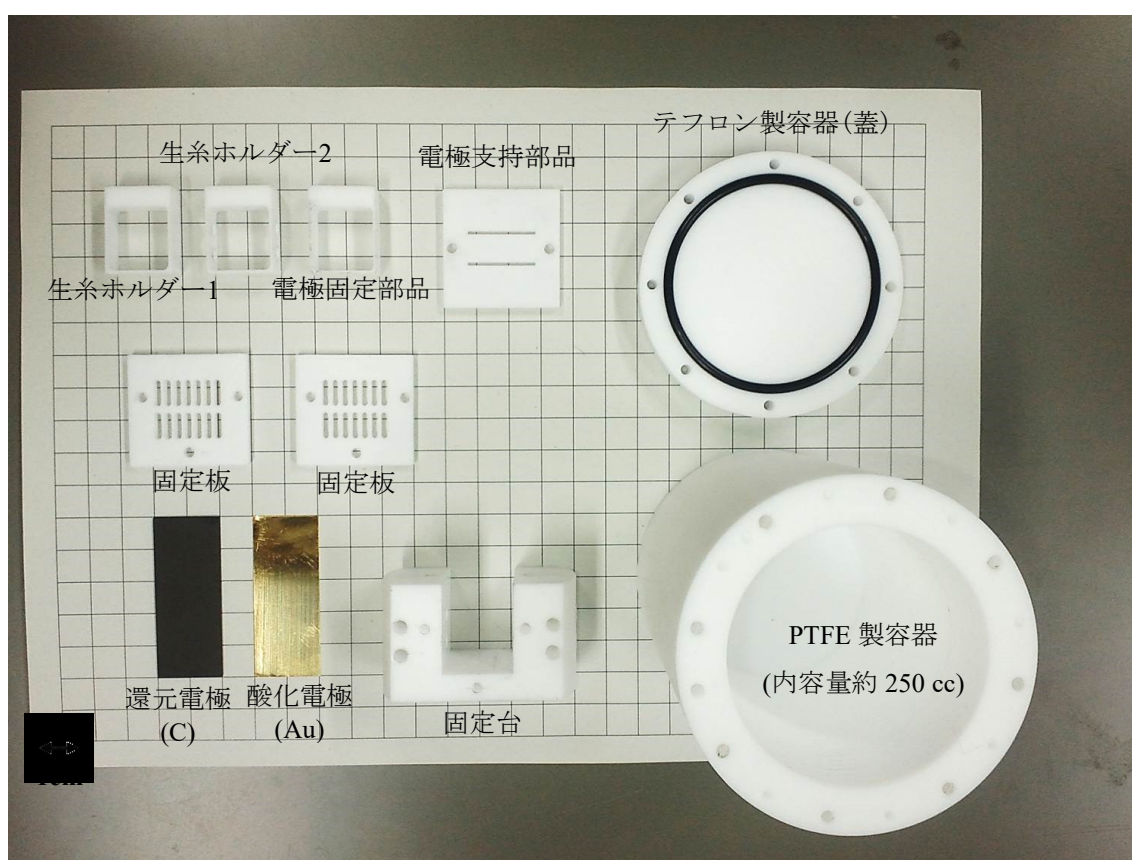


図 2-1 検出器を構成する部品の写真。

検出器の組み立ては検出器を構成する全ての部品を、油分やたんぱく質等の除去のために中性洗剤で洗浄、超音波洗浄した後、皮脂付着を防ぐためにラテックス製の手袋を装着して行った。電極は超音波洗浄の前に、電極表面の無機不純物を除去するために熱硝酸処理を約 1 分行った。テフロン製容器内の部品はすべて図 2-2 に示される固定台を土台として組み立てた。固定台の凹んでいる部分に、約 17 mm の長さに切りそろえた生

糸 0.50 g を詰めた生糸ホルダー1、金電極、生糸 0.50 g を詰めた生糸ホルダー2、炭素電極、生糸を詰めていない電極固定部品の順にはめ込み、その両側から固定版で挟むように蓋をして、アクリル製ネジで固定した。生糸ホルダー2 は生糸ホルダー1 の側面に直径 4 mm の穴が片面に 2 個ずつ、計 4 個開いている部品である。固定台にも生糸ホルダー2 と同様の穴が開いており、内部まで水が通るようになっている。金電極と炭素電極はそれぞれ酸化反応電極(アノード)、還元反応電極(カソード)として使われる。電極の形状はどちらも面積 20 mm×50 mm の板状であり、厚さは金電極が 0.1 mm、炭素電極が 1.0 mm、純度は金電極が 99.99%、炭素電極が 99.5%である。最後に電極を固定するために電極支持部品で固定台の上から蓋をするように固定した。以上により組み立てられた部品群がテフロン製容器内に設置された。

生糸ホルダーへの生糸の設置は、生糸の向きを揃えて行った。生糸は、生糸ホルダーの縦の長さ(19 mm)よりも少し短い程度(約 17 mm)に切りそろえるが、このときハサミやカッター等ではなく、紙用の裁断機を用いて裁断した。これは作業効率および裁断精度の点で優れるためである。裁断した生糸は繊維の向きが揃っており、そのままの状態では重さを量り、ピンセットで生糸ホルダーに詰めた。このときに無理なく詰めることができるのが 0.5 g 程度の量である。

次にテフロン製容器内に設置された各電極に金メッキワニロクリップを用いて導線を接続し、その導線の他端をテフロン製容器の外側まで取り出した。導線は、金電極側と、炭素電極側で異なるものを用いた。前者は 99.999%銅線(φ0.25 mm)を熱収縮チューブで覆ったもので、導線とワニロクリップは銀ペースト焼結によって接続されている。一方後者は、エナメル線(φ0.26 mm)の、必要部分の被覆を剥がしたものである。導線とワニロクリップははんだ付けした。

テフロン製容器内部には精製水 50 g を入れた。その後、ステンレス製ネジを用いてテフロン製容器の蓋を閉じる。蓋の裏側には O リングが付いており、密閉性は保たれる。O リングで外気からの酸素流入が無視できることは 2014 年に実験で確認済みである。以上の手順で検出器本体が完成した。ワニロクリップが精製水に接していると、特にそのバネ部(金メッキの無い真鍮部分)で酸素消費反応が起こり、内部の起電力生成機構に影響を与えるため注意が必要である。

次に検出器の周辺機器について述べる。各電極から繋がる導線は、入力インピーダンス約 1 MΩ に調整した抵抗に接続した。入力インピーダンス調整に使用している抵抗素子は炭素被膜抵抗であり、温度係数が -200 ~ -800 ppm/°C となっている。検出器設置場所は室内であり温度変化は大きく見積もっても 20°C 程度と考えられる。このため抵抗値の温度による変化は最大でも -1 %程度と見積もられ、無視している。抵抗素子にかかる電圧を日置電気株式会社の記録用電圧ロガーを用いて測定し、電流に変換して検出器出力電流とする。検出器はイウチ製(現アズワン)の恒温器(MINI COOL INCUBATOR PC-100、PC-101)内に設置され、温度 300K に保たれる。電圧記録は測定終了後に記録用電圧ロガーの通信ユニット(COMMUNICATION BASE 3910)によってコンピュータに転送した。

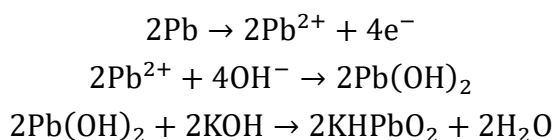
2.2. 溶存酸素測定用検出器

通常の出力電流測定に使用する検出器とは別に、検出器内の溶存酸素濃度測定用の検出器も開発した。本検出器は外側のテフロン容器の外径を大きくとり、内部を円筒状に削ることで市販の溶存酸素計(東亜 DKK,DO-30)を挿入できるようにしたものである。また蓋には検出器内の溶存酸素量を大気平衡濃度から減少させて、0~10%程度にするための窒素バブリング用の部品も装着している。

DO-30 は隔膜式ガルバニ電池式の原理で動作する。一般に電解質溶液中に 2 種類の金属を浸漬して電極間に一定の電圧をかけると溶存酸素量に応じた電流が流れる。しかし電流を発生させる要因は酸素以外にもあるため、それらの要因を排除するために通常溶存酸素計にはガス透過膜(酸素透過率の高いもの)が取り付けられている。また 2 つの電極を銀及び鉛にして電解液に水酸化カリウムを選ぶと、外部から電圧を加えなくとも酸素量に応じた電流が流れ、電池が構成される。隔膜を透過してきた酸素は還元電極(Ag/AgCl 電極)で



なる反応が起こって還元される。一方酸化電極(Pb)では



なる反応が起こる。酸化電極の反応をまとめると



である。結局酸素が 1 個反応すると電子が 4 個流れる。電気化学におけるバトラー・ホルマーの式^[29]を使うことで、電流から酸素の濃度が求められる。酸素の透過量は水中の酸素分圧に比例するため、分圧の測定から濃度へ変換できる。これがガルバニ電池式である。

内部のテフロンパーツ群は通常の見出し器と同様である。本見出し器特有の部品の写真を図 2-3 に、全体の模式図を図 2-4 に、見出し器稼働中の写真を図 2-5 に示す。溶存酸素計はテフロンパーツが設置されていない水中の、電極から約 2.5 cm の位置に挿入した。



図 2-3 溶存酸素測定用検出器特有の部品および溶存酸素計の写真。

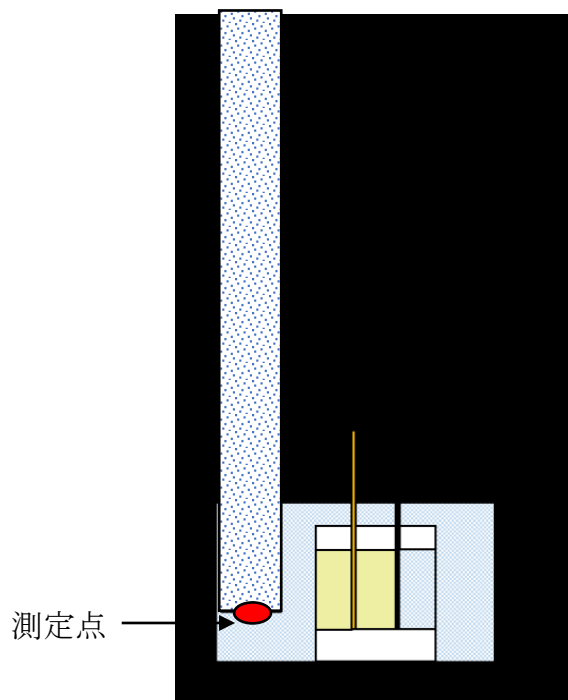


図 2-4 溶存酸素測定検出器の模式図。 図 2-5 溶存酸素測定実験の検出器写真。

2.3. 生物由来物質である生糸

生糸は蚕の繭を煮熟して繭を形成する繊維をほどく製糸作業で生成される。一般的に、中の蚕の蛹を除いた繭の質量の 65~84 %が生糸になる^[31]。繭はフィブロイン、セリシン (C₃₀H₄₀N₁₀O₁₆) という 2 種類のたんぱく質に加えて、脂肪、ロウ、色素、ミネラルなどから構成されている。繭の組成を表 2-1 に示す。

表 2-1 蚕の繭の組成。

成分	含有量[%]
フィブロイン	72~81
セリシン	19~28
脂肪、蜜蝋	0.8~1.0
色素	1.0~1.4

生糸をアルカリ性の溶液で煮熟すると、主要なたんぱく質のひとつであるセリシンを除くことができ、フィブロインという繊維状のたんぱく質だけが残る。生糸では、セリシンが 2 本のフィブロイン繊維を覆うようにして接着している。このため、セリシンを除去した繊維は生糸よりも細くなり柔軟性に富む。また、セリシンを完全に除去するのではなくわずかに残すことで光沢が生まれる。こうして柔軟性と光沢を持たせた繊維を絹糸と呼び、この一連の過程を生糸の精練という。しかし、精練の方法はアルカリ性溶液を用いる方法以外にもある。

生糸は電気伝導性に乏しく、摩擦による静電気を容易に蓄積する。製造工程では、この静電気を高湿度下(25 °C で湿度 65 %以上)で消散させる。生糸の色は薄い黄色だが、この色はセリシンの色である。生糸を精練して絹糸にすると、この色は無くなる。生糸の繊維の太さの単位はデニールであり、繊維 9000m の質量 g が値となる。9000 m で 21 g の繊維が 21 デニールである。

生糸の断面図を図 2-6 に示す。セリシンは 3 種類のセリシン(I,II,III)の複合体であり、セリシン III はセリシン層の内側(フィブロインに直接接触)、セリシン I はセリシン層の外側に位置している。セリシン III が最も水に溶けにくく、逆にセリシン I はもっとも水に溶けやすい。セリシンの分子量は 30~40 万と言われている^[32,33]。また熱を加えることでセリシン II がセリシン I に変化するという研究報告もある^[34]。

セリシンとフィブロインを構成するアミノ酸組成を表 2-2 に示す。セリシンとフィブロインに含まれるアミノ酸は共通しているが、主成分が異なる。セリシンは主にセリン(30.1%)、スレオニン(8.5%)、アスパラギン酸(16.8%)、グルタミン酸(10.1%)から、フィ

ブロインは主にグリシン(42.8%)、アラニン(32.4%)から構成されている。

表 2-2 セリシンとフィブロインのアミノ酸組成^[34]。アミノ酸の種類は同一だが、主成分が異なる。

アミノ酸	セリシン [%]	フィブロイン [%]
グリシン	8.8	42.8
アラニン	4	32.4
ロシン	0.9	0.7
イソロイシン	0.6	0.9
バリン	3.1	3
アルギニン	4.2	0.9
ヒスチジン	1.4	0.3
リジン	5.5	0.5
アスパラギン酸	16.8	1.9
グルタミン酸	10.1	1.7
セリン	30.1	14.7
スレオニン	8.5	1.2
フェニルアラニン	0.6	1.2
チロシン	4.9	11.8
プロリン	0.5	0.6
メチオニン	0.1	0.2
トリプトファン	0.5	0.5
シスチン	0.3	0.1

フィブロインはフィブリルという繊維が集まって形成されている。そのフィブリルはさらに細かいマイクロフィブリルの集合体である。フィブロインの分子量は約 37 万である^[35]。

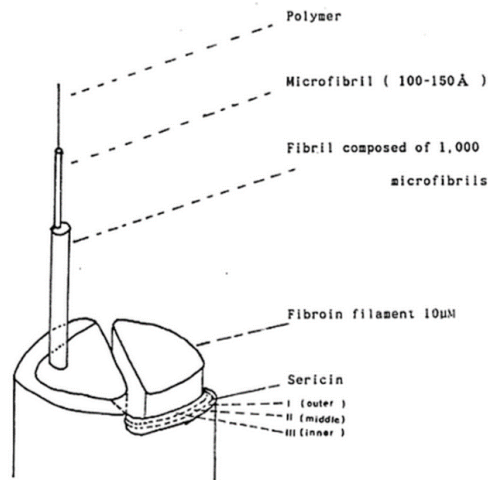


図 2-6 生糸の断面図^[35]。フィブロインという繊維状のタンパク質をセリシンという膠状のタンパク質が覆っている。

2.4. セリシン除去試料を用いた実験

先行研究の実験結果から、検出器に生糸を組み込むことが必須であることが明らかになっていた。生糸が、弱い相互作用、もしくは電気化学反応において、重要な役割を果たしていることが示唆される。本実験では、新たに生糸の中のどのような成分が、特に検出器出力信号生成に寄与しているのかを調べることを目的とした。

2.3 節で説明したように、生糸は主にセリシン、フィブロインの 2 種類のタンパク質から構成されている。フィブロインが繊維状のタンパク質、セリシンが膠状のタンパク質であるため、セリシンは特別な処理によって、容易に除去することができる。そこで本実験では、特別な操作を加えない生糸(標準試料)、セリシンを除去した生糸(セリシン除去試料)、熱経験を与えた生糸(熱経験試料)の 3 種類の試料を準備して出力測定実験を行った。セリシン除去の過程で熱を加える必要があるため、実験結果がセリシン除去によるものなのか、加熱によるものなのかを区別するために、熱経験試料も準備した。

2.4.1. 試料の準備

本実験では、特別な操作を加えない 0.50 g の生糸(21 デニール)を用意した(標準試料)。生糸は、繭を製糸して作った生糸をさらに 6~7 本まとめて巻き上げているものを購入して使用した。

セリシンの検出器内での働きを調べるために、同量の生糸からセリシンを除去した試

料も準備した(セリシン除去試料)。生糸からセリシンを除去する方法は一般的な生糸の精練(生糸からセリシンを除去して、柔軟性および光沢に富んだ絹糸を作る)方法のひとつであるアルカリ精練を用いた。0.50 g の生糸に対して 12 %o.w.f.つまり 0.06 g の炭酸ナトリウムを 100 g の精製水中に溶かし、この炭酸ナトリウム水溶液に、生糸を入れた。以上のようにして作った生糸の入った炭酸ナトリウム水溶液をビーカーに入れ、ホットプレートを用いて 1 時間煮熟(約 85 °C)した。煮熟後は溶液が薄い黄色になっていたため、セリシンが溶け出したものと考えられた。セリシンを除去した直後のセリシン除去試料は弱アルカリ性の水を含んでいるため、超音波洗浄機(asone/USM)を使って洗浄を一回行った。洗浄はセリシン除去試料を精製水の入ったビーカーに直接入れて、5 分間行った。

セリシンを除去すると生糸から薄い黄色が消え、光沢が出た。このことから、セリシンは完全には除去できなかつたと考えられる。実際、セリシンを完全に除去すると光沢は無くなる。わずかにセリシンを残すことで精練された絹糸に光沢が出る。本実験で使った生糸、およびセリシンを除去した試料の写真を図 2-7 に示す。写真は、実験後に試料を検出器から取り出し、広げて乾燥させた後に撮影した。左側が標準試料で、右側がセリシン除去試料である。

標準試料とセリシン除去試料に加えて、セリシンを除去する過程で生糸に付与される熱経験が生糸に与える影響も調べるために、同量の生糸をポリエチレン製の袋に密封して水に濡れないようにして精製水中に入れて約 85 °C で 1 時間加熱した(熱経験試料)。ポリエチレン袋内の空気は極力抜いて、生糸が十分に加熱されるようにした。生糸の構成要素はほとんどタンパク質であるため、加熱によって変質することは十分に考えられ、セリシンを除去した影響と、加熱による影響を分離して調べるために本試料を準備した。

本実験では以上の標準試料、セリシン除去試料、熱経験試料の 3 種類の試料を準備した。

セリシン除去操作によってどの程度セリシンが除去できたのかを調べるために、セリシン除去試料は実験終了後に検出器から取り出して、3 日間程度実験室に放置して自然乾燥を待った後、質量を測定した(検出器内での溶出は無視する)。標準試料および熱経験試料は検出器内でどの程度セリシンが溶出したのかを調べるために、セリシン除去試料と同様に、実験終了後の質量を測定した。



図 2-7 標準試料(左)とセリシン除去試料(右)。セリシン除去によってフィブロイン繊維が残り、繊維に光沢が出ている。

2.4.2. 検出器出力信号測定実験

標準試料、セリシン除去試料、熱経験試料の3種類の生糸をそれぞれ2台の検出器(計6台)に組み込んで実験を行った。再現性を確認するために実験は3回行った。つまり、各試料につき合計6回の実験を行ったことになる。

1つの恒温器には検出器を2つ入れることができる。3つの恒温器に個性の違いが現れる可能性もあるため、同じ恒温槽に同じ条件の試料を入れないように設置した。また、恒温器内での検出器の向きは、全ての検出器の金電極と炭素電極が一直線上に並ぶようにして、直線上の電極は金電極と炭素電極が交互に現れるような配置にした。出力信号電圧の記録は5分毎に行った。

出力信号測定実験で得られた結果を以下の図 2-8 に、質量測定実験の結果を以下の表 2-3 に示す。実験データは平均値を表示しているが、電圧測定回路の接触不良等に起因すると考えられる大きな信号の乱れが生じた検出器出力は除いた。誤差棒は標準偏差を表している。実験前後の質量測定結果も平均値を表示している。誤差は標準偏差である。

表 2-3 より、実験前後でセリシンを除去した生糸の質量が 24.8 %減っていることがわかる。セリシンは生糸中に通常 20~30 %含まれているとされているため、ほぼ除去されたと考えられる。また、図 2-8 から、セリシンを除去した生糸では特徴的な出力増加曲線が現れないことが明らかになった。このことから、生糸の中の、特にセリシンが重要な役割を果たしていると推定される。

また、表 2-3 から、生糸を精製水中に入れておくだけで 6~7%のセリシン(生糸全体の質量に対する割合)の溶出が起こることも明らかになった。これは全セリシンの質量の 24~28%に相当する。このことから、生糸のもっとも外側に位置し、もっとも水に溶けやすいセリシン I のみが溶出した可能性がある。セリシン II とセリシン III はセリシン I に比べて水に溶けにくいため、これらの溶出量は比較的少ないと考えられる。

本実験結果から、蚕の生反応(特に、タンパク質の重合などにおける電子の移送など)に、セリシンを通じて、弱い相互作用が利用されている可能性が示唆された。

今回はセリシンを除去してフィブロインのみを用いて実験を行ったが、セリシン生糸を使用すると、直接セリシンの効果を確認されると考えられる。今後、セリシン含有率 98.5 %のセリシンホープ^[36]という種の蚕から採取した生糸を用いて実験を行うことも計画されている。

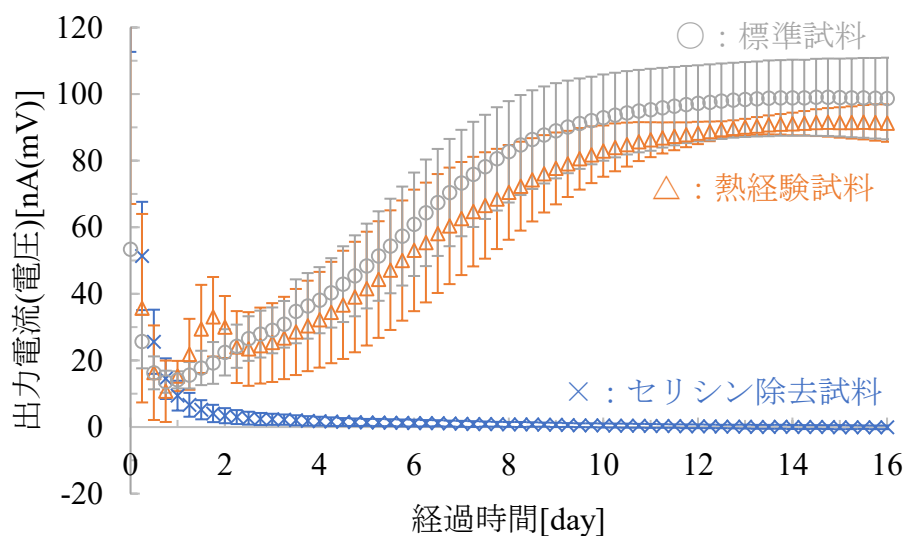


図 2-8 セリシン除去実験の結果。セリシンを除去すると検出器出力電流は 0 nA になった。

表 2-3 実験前後の質量測定結果

試料	標準	セリシン除去	熱経験
実験前[mg]	500	500	500
各操作後[mg]	500	376±2	500
除去量[mg]	0	124±2	0
除去率[%]	0	24.8±0.2	0
実験後[mg]	465±3	376±2	470±3
溶出量[mg]	35±3	0	30±3
溶出率[%]	7.0±0.6	0	6.0±0.6

2.5. 検出器内に溶存するイオンの定量分析

生糸を生成水中に放置すると、生糸の質量の 6~7 %に相当するセリシン I という成分が主に溶出することが、2.4 節から明らかになった。この溶出物には、金電極や炭素電極表面で酸化還元反応を起こし、検出器出力電流に影響を与えるイオンが含まれる可能性がある。そこで、本実験では、生糸から溶出するイオン(不純物イオン)の定量測定実験を行った。イオン濃度測定にはイオンクロマトグラフィを用いた。イオンクロマトグラフィでは陽イオンは主に電気伝導度検出器、陰イオンは主に吸光度検出器が用いられる。測定はエイキット株式会社に委託した。測定試料は以下の 7 種類である。

- (a) 1 g の生糸を 0 日間浸漬した 100 cc の精製水
- (b) 1 g の生糸を 1 日間浸漬した 100 cc の精製水
- (c) 1 g の生糸を 2 日間浸漬した 100 cc の精製水
- (d) 1 g の生糸を 4 日間浸漬した 100 cc の精製水
- (e) 1 g の生糸を 8 日間浸漬した 100 cc の精製水
- (f) 1 g の生糸を 16 日間浸漬した 100 cc の精製水
- (g) 1 g の生糸からセリシン除去した試料を 8 日間浸漬した 100 cc の精製水

検出するイオンは以下の 12 種類である。

陽イオン

- (i) ナトリウムイオン(Na^+)
- (ii) マグネシウムイオン(Mg^{2+})
- (iii) カルシウムイオン(Ca^{2+})
- (iv) アンモニウムイオン(NH_4^+)

(v) カリウムイオン(K^+)

陰イオン

(vi) フッ化物イオン(F^-)

(vii) 塩化物イオン(Cl^-)

(viii) 臭化物イオン(Br^-)

(ix) 硝酸イオン(NO_3^-)

(x) 亜硝酸イオン(NO_2^-)

(xi) 硫酸イオン(SO_4^{2-})

(xii) リン酸イオン(PO_4^{3-})

測定結果を表 2-4 および図 2-9 に示す。ただし Br^- , NO_3^- , NO_2^- , PO_4^{3-} の 4 種類は全ての試料で検出限界値(0.05 mg/L)以下の濃度だったため省略する。

測定の結果、精製水ではすべてのイオンが検出限界値以下であった。また NH_4^+ 以外のイオンは約 2 日で生糸からほとんどの量が溶出してそれ以降の溶出量は少ないと見なせる。一方 NH_4^+ は 16 日目まで溶出し続けていることが明らかになった。

表 2-4 イオンクロマトグラフィによる溶出不純物イオン濃度測定結果。精製水やセリシン除去した試料を 8 日間浸漬した試料ではすべてのイオンが検出限界値以下であったが、生糸を浸漬した試料では時間経過に応じてイオンの溶出があった。

	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)	(g)セリシン除去試料
浸漬日数(日)	0	1	2	4	8	16	8
$F^-(mg/L)$	-	0.11	0.11	0.15	0.14	0.13	0.06
$Cl^-(mg/L)$	-	0.34	0.27	0.3	0.43	0.27	0.45
$Br^-(mg/L)$	-	-	-	-	-	-	-
$NO_3^-(mg/L)$	-	-	-	-	-	-	-
$NO_2^-(mg/L)$	-	-	-	-	-	-	-
$SO_4^{2-}(mg/L)$	-	8	7.8	11	12	12	0.33
$PO_4^{3-}(mg/L)$	-	-	-	-	-	-	-
$Na^+(mg/L)$	-	1	0.93	0.87	1	2	14
$Mg^{2+}(mg/L)$	-	1.6	1.6	2.9	3.8	3.3	-
$Ca^{2+}(mg/L)$	-	7.7	8.4	11	14	17	-
$NH_4^+(mg/L)$	-	8.3	9.3	19	32	43	0.23
$K^+(mg/L)$	-	0.96	0.89	1.9	1	1.2	0.06

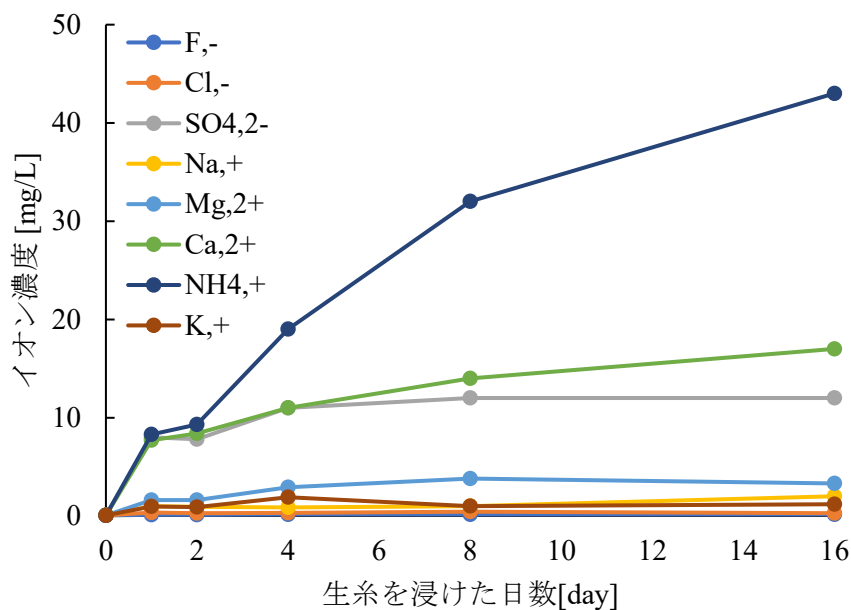
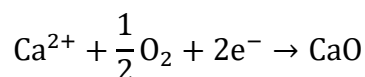


図 2-9 イオンクロマトグラフィの結果。アンモニウムイオン NH_4^+ 以外は約 2 日で大部分が溶出することが明らかになった。

イオンは酸素や他のイオンと結合して発熱反応を起こして、より安定な状態を作り、それはしばしば固体だが NH_4^+ の場合は結合の相手が NO_3^- や Cl^- である^[36]。これらは水中にイオンとして存在するため自然に結合していると考えられる。一方 Mg^{2+} , Ca^{2+} は酸素イオンと結合して安定な状態を作る。酸素は通常酸素分子の状態(気体)で存在するため例えば



という反応を起こして安定な状態に変化する。このとき電子の移送が必要となるため電極を介した反応になる。このように溶出した不純物イオンの中には電極を介した電子移送に関与するイオンと関与しないイオンが存在する。電極反応に寄与すると思われるのは Mg^{2+} , Ca^{2+} の 2 価の陽イオンのみである。結局、この 2 種類のイオンのみが検出器出力電流に影響を及ぼすと考えられる。これらのイオンは約 2 日でほとんどの量が溶出しているため検出器の出力電流測定開始 2 日目近辺の出力電流に影響を及ぼしていると推定される。このとき出力電流には特徴的な初期ピークが現れており、炭素極板からの電子の授与によって Mg^{2+} , Ca^{2+} の炭素極板を介した還元が起きていることが示唆される。このときに検出器内の酸素も消費されることになる。

(g)セリシン除去試料で Na^+ が多く検出されているのは、セリシン除去に用いた炭酸ナトリウム由来と考えられる。また、この資料(g)ではセリシンを除去していない通常の生糸を使用した試料に比べて明らかにカリウムの溶出量が少ない。フィブロインよりもセリシンの方がカリウム含有量が多い可能性がある。

2.6. 溶存酸素測定実験

先行研究では検出器内水中の溶存酸素濃度測定実験が行われた(1.2.6 項参照)。当時は検出器内の酸化電極側に市販の溶存酸素計(MO-128)を挿入して、1 度のみ測定実験が行われた。このため検出器内における酸素濃度の勾配に関する情報は得られず、検出器出力信号解析の際に、酸素濃度を空間的に一様として扱うしかなかった。また実験の再現性も確認されていなかった。

本実験の目的は以上の様な問題点を解決し、実験の再現性を確認し、新たに検出器内の溶存酸素濃度勾配を研究することである。

2.6.1. 過去の溶存酸素濃度測定実験の再確認

過去の溶存酸素測定実験と同じ条件で実験を行った。ただし溶存酸素計は MO-128 ではなく DO-30 を用いた。また検出器は 2.2 節に示した溶存酸素測定用のものを使用した。実験結果を過去の実験データと比較して図 2-10 に示す。縦軸は温度に依存した大気圧平衡値(300 K の場合は 7.901 mg/L)に対する溶存酸素濃度%である。

過去の実験、今回の実験の両方のデータで、開始後 2 日目までは溶存酸素濃度が減少し、その後増加に転じており、定性的には同じ結果と見なせる。過去の実験データの方が高い値を示しているのは、今回の実験(電極から約 2.5 cm)よりも金電極に近い位置(電極から約 1.8 cm)で溶存酸素測定を行ったためと理解される。この実験によって金電極側での酸素生成反応が再確認され、金電極側では溶存酸素濃度が増加していることが明らかになった。

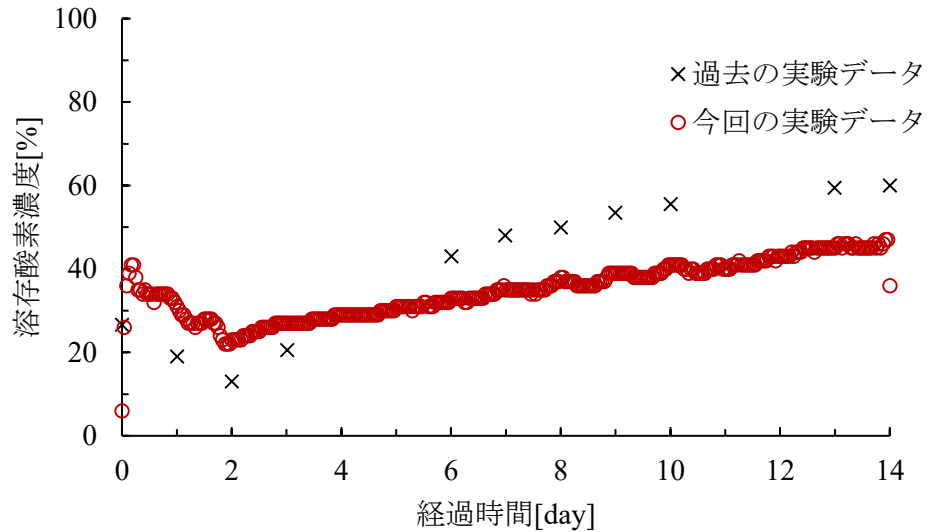


図 2-10 検出器出力信号を測定しながら金電極側で行った溶存酸素測定実験の結果。過去の実験データと矛盾しない結果となった。

2.6.2. 炭素極板側の溶存酸素濃度測定実験

本実験では新たに炭素極板側でも溶存酸素濃度測定実験を行った。2.6.1 項の実験体系から溶存酸素プローブの位置を検出器中心軸周りに 180 度回転させた状態で実験を行った。測定結果を金電極側での溶存酸素測定実験結果及び検出器出力電流と共に図 2-11 に示す。検出器出力電流は 2.6.1 項の実験時の出力電流と、本実験での出力電流の平均値である。

炭素側では溶存酸素濃度が約 5 日かけて指数関数的に減少し、その後 1 ~ 3 % となった。炭素電極側では酸素消費反応が起きていることが確認された。金電極側及び炭素電極側の計 2 点で溶存酸素測定実験を行い、2 つの実験データで溶存酸素濃度が異なっていたことから、検出器内溶存酸素濃度は一様ではなく濃度分布を持つことが明らかになった。

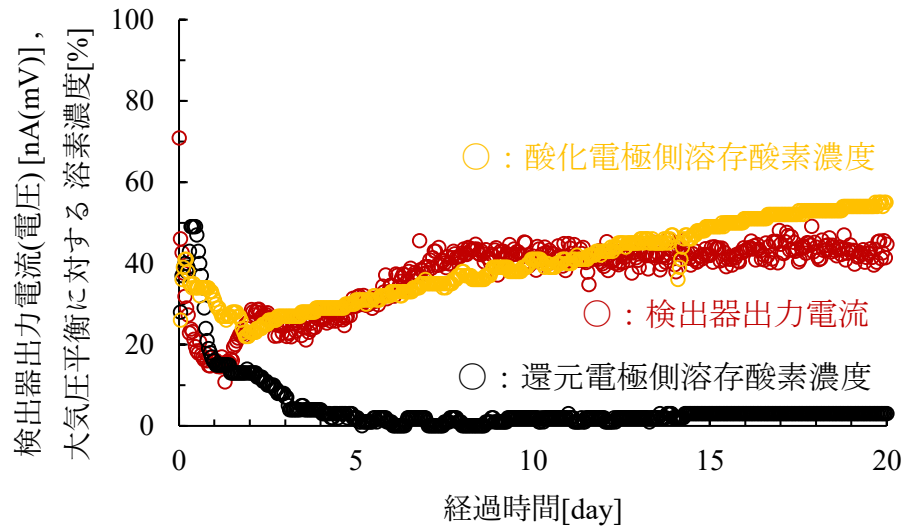


図 2-11 炭素極板側および金電極側での溶存酸素測定実験の結果及び検出器出力電流。金電極側では酸素生成反応が、炭素電極側では酸素消費反応が起こっていることが明らかになった。

2.7. 実験結果から明らかになった検出器の特性

検出器出力信号特性を明らかにするために行った本章の3つに実験から、次のことが明らかになった。

- (1) 生糸内のセリシンというタンパク質が、出力信号生成に大きく寄与している
- (2) 出力信号測定開始後2日程度に現れる信号ピークは、溶存酸素消費を伴う不純物イオンの酸化反応によるものである可能性が高い
- (3) 金電極側では酸素生成反応、炭素電極側では酸素消費反応が起こっており電極間に酸素濃度勾配が存在する

これらの実験事実、および実験データから推定されることを考慮して、本論文の第4章で検出器内での電気化学反応などを考察する。

第3章 PWR および大強度トリチウム線源を用いた検出器出力信号測定実験

先行研究では、重水減速混合酸化物燃(MOX)燃料の新型転換炉(ATR)炉心から 18 m の位置および、九州大学実験室(環境中ニュートリノ場)の 2 か所で検出器出力信号測定が行われ、前者の検出器出力信号が後者のものよりも明らかに増大する結果が得られていた。本実験において検出器設置場所は放射線管理区域外であり、ガンマ線、中性子線は十分遮蔽されておりバックグラウンドレベルであることが確認されているため、検出器出力信号の弱い相互作用との関連が示唆された。しかし過去の実験データには誤差が含まれておらず、信頼性が十分ではなかった。そこで、本研究では新たに加圧水型原子炉(PWR)周辺で測定し実験結果の再確認を行うとともに、単一のベータ崩壊核種からなる大強度トリチウム線源を用いて実験し、検出器出力信号生成に有効な弱い相互作用場の知見を得ることを目的とした。

3.1. PWR 周辺での実験

先行研究では重水減速 MOX 燃料の ATR、ふげんを利用した。そこで、本実験では、ATR とは異なった型の原子炉である加圧水型原子炉(PWR)の周辺に検出器を設置して実験を行った。実験に用いた原子炉は、韓国に設置されている Hanbit 原子力発電所の電気出力 1 GW の PWR である。

検出器の設置場所は炉心から 26 m の位置に設定した。この位置は、原子炉燃料内の低エネルギーベータ崩壊核種 ^{241}Pu 由来のニュートリノ束が、前述の MOX 燃料の ATR 炉心から 18 m の位置と同程度になる場所である。恒温器を 2 台設置し、各恒温器に 2 個の検出器を格納して、計 4 個の検出器で出力信号測定実験を行った。また、対照実験として、炉心から 1.1 km 離れた場所にあるプレハブハウス内にも同様に複数の検出器を設置した。設置位置が表記されている看板の写真を図 3-1 に示す。実験結果は複数台の検出器出力信号を平均して、図 3-2 に過去の ATR 実験結果とともに示す。誤差棒は標準偏差を表している。

本実験結果から、PWR の近くに設置した検出器の出力信号が、炉心から離れた場所のものよりも、有為に増大していることが明らかになった。過去の実験データに矛盾しない結果が得られた。炉心から 26 m の位置でも、ガンマ線や中性子線は十分遮蔽されており、放射線強度はバックグラウンドレベルであったことを確認している。このことから、やはり原子炉から弱い相互作用に関連した影響を受けて、出力信号が増大したことが示唆される。

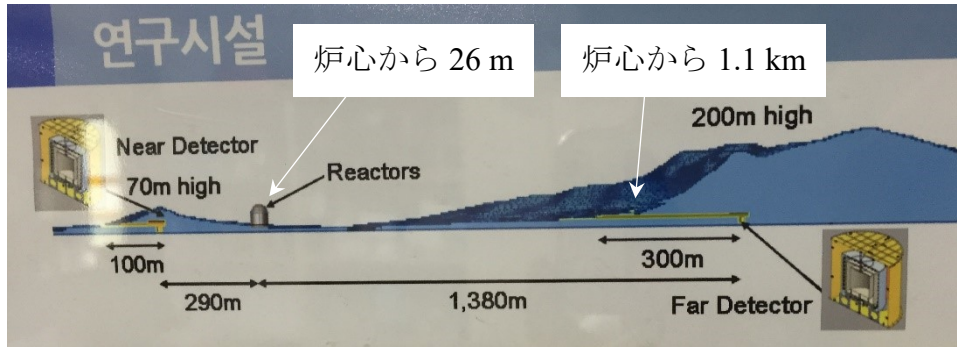


図 3-1 PWR を利用した実験における検出器設置位置。原子炉建屋内の炉心から 26 m の位置に 4 個、炉心から約 1.1 km 離れたプレハブハウス内に 4 個の検出器を設置した。

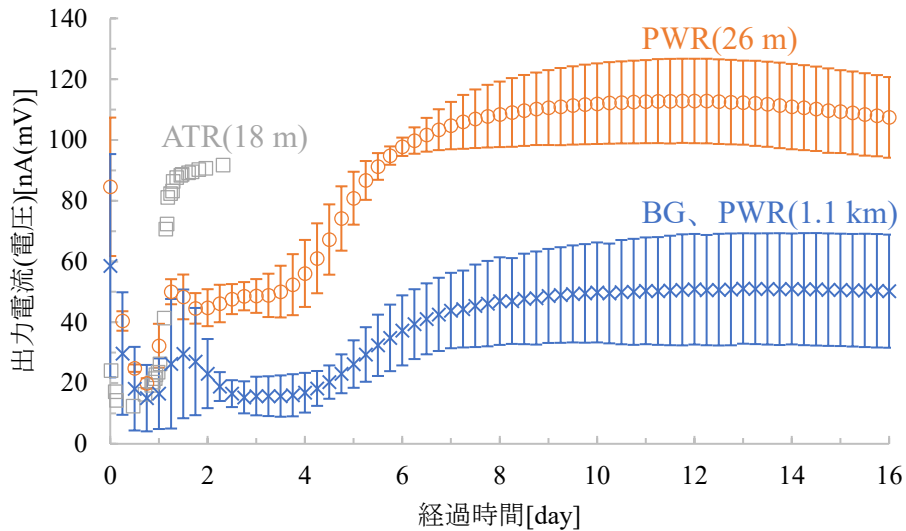


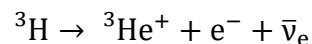
図 3-2 PWR を利用した検出器出力測定実験結果。赤○印は炉心から 26 m、青×印は炉心から 1.1 km の位置(BG)での検出器出力信号の平均値を表す。誤差棒は標準偏差である。誤差の評価も含めて、PWR 近くに検出器を設置すると、出力信号が増大することが明らかになった。

この実験結果と、1.2.2 節の先行研究の ATR での実験結果、そして 1.2.3 節のニュートリノ束の見積もりを総合して考えると、低エネルギーのニュートリノ、もしくはその発生源である低エネルギーベータ崩壊核種の収量が検出器出力信号増大に関係していることが示唆される。ATR 実験と PWR 実験では ^{241}Pu 由来の反ニュートリノ束がそれぞれ $2.6 \times 10^{10} [\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}]$ 、 $2.0 \times 10^{10} [\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}]$ と同程度になっている。このため検出器出力信号も同程度になると予想していたが、実験結果では ATR 実験の方で明らかに信号増大効果が大きくなっている。入射ニュートリノによって出力信号が増大するのならば、そのニュ

ートリノ束に比例するはずであるが、 ^{241}Pu のニュートリノ束比だけでは説明できない。そこで、低エネルギー成分に着目した研究を行うために、大強度トリチウム線源周辺での実験を行うことにした。

3.2. 大強度トリチウム線源を用いた実験

PWR を用いた実験で、検出器が原子炉の特に低エネルギーベータ崩壊核種から何らかの影響を受けていることが明らかになったが、その具体的な要因はわからなかった。原子炉には多様なベータ崩壊核種が含まれているため、それらの影響を分離して定量的に評価するのが困難である。そこで、本実験では、単一のベータ崩壊核種からなる大強度トリチウム(^3H)線源を用いて検出器出力信号測定実験を行った。 ^3H は最大エネルギー 18.6 keV の低エネルギーベータ崩壊線源である。崩壊は



として起こり、崩壊後の ^3He は安定核種のため、トリチウム線源には、他の核種が混入しない。このため、純粋な ^3H のみの影響を調べることができる。

本実験で用いたトリチウム線源は、日本原子力研究開発機構(JAEA)のトリチウムプロセス研究棟(TPL)が保有する約 17 g の線源である。このトリチウムはグローブボックス内に保管されており、検出器はこのグローブボックスの外に設置した。線源が保管されているグローブボックスの写真を図 3-3 に示す。トリチウムは ZrCo 合金に吸着されて貯蔵されており、300 °C以上に加熱するとトリチウムを放出するが、室温程度では吸着状態になっている。

本実験では、トリチウム線源から 8.6 m の位置に恒温器を 2 台設置し、各恒温器に 2 個の検出器を格納して、計 4 個の検出器で出力信号測定実験を行った。この位置は、 ^3H 由来のニュートリノ束が重水減速の ATR 炉心から 18 m の位置と同程度になる場所である。また、線源から約 400 m 離れた位置にも同様に 4 個の検出器を設置した。設置した検出器の写真を図 3-4 に示す。検出器同志の干渉を避けるために、同じ恒温器内の 2 個の検出器は高さを変えている。実験結果を図 3-5 に示す。

本実験によって、検出器出力信号は原子炉付近ではなくとも ^3H の付近で増大することが明らかになった。これによって検出器出力信号増大の要因が ^3H 由来のニュートリノ入射によるものか、 ^3H 由来の弱い相互作用場によるものである可能性が示唆された。ATR は重水減速原子炉内であるため、熱中性子吸収反応によって多量の ^3H が生成され、主に ^3H の影響で検出器出力信号が増大したものと考えられる。 ^3H の特徴としては核種の中でもっとも相対的中性子数((中性子数 N-陽子数 Z)/核子数 A)が大きいこと以外に、放出されるベータ線・ニュートリノのエネルギーが 18.6 keV と低く陽子と中性子のエネ

ルギーレベルの差が小さいことが挙げられる。低エネルギーベータ崩壊核種で原子炉に多量に含まれるのは ^{241}Pu (20.8 keV)であることから、原子炉では ^3H 以外にも ^{241}Pu 等の影響もある可能性は高い。

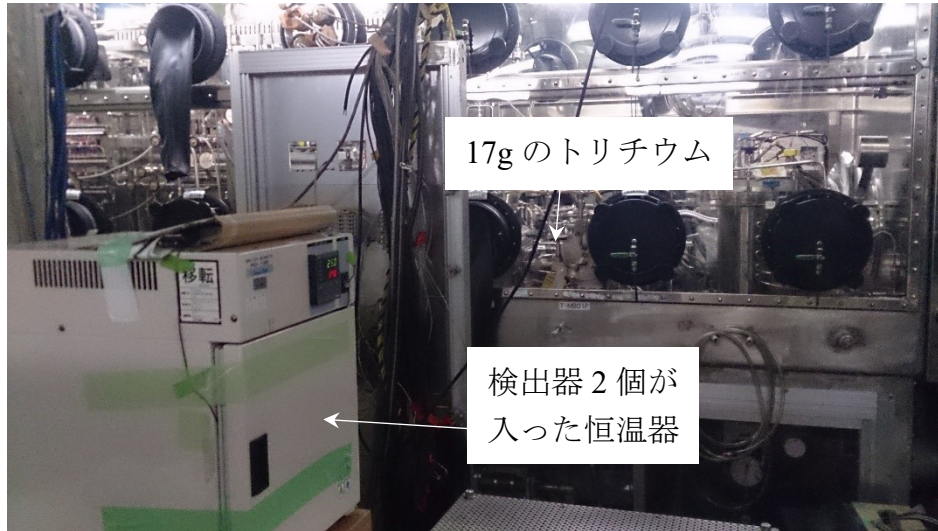


図 3-3 トリチウム線源が保管されているグローブボックスの写真。

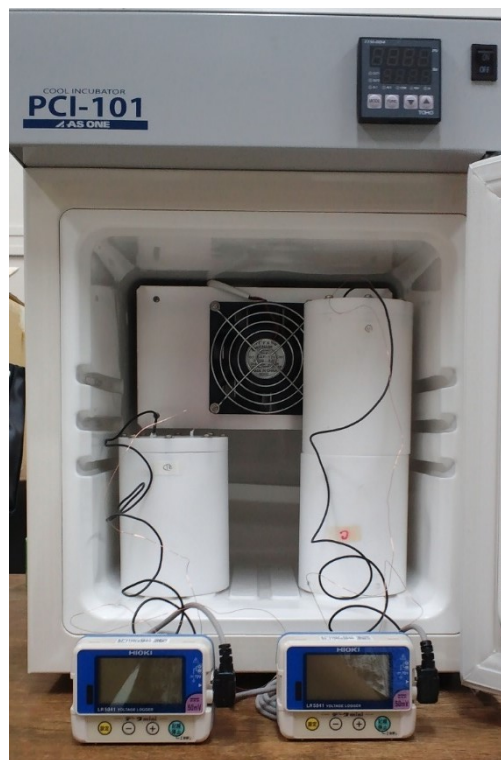


図 3-4 設置した検出器の写真。検出器同志の干渉を避けるために、同じ恒温器内の 2 個の検出器は、高さを変えている。

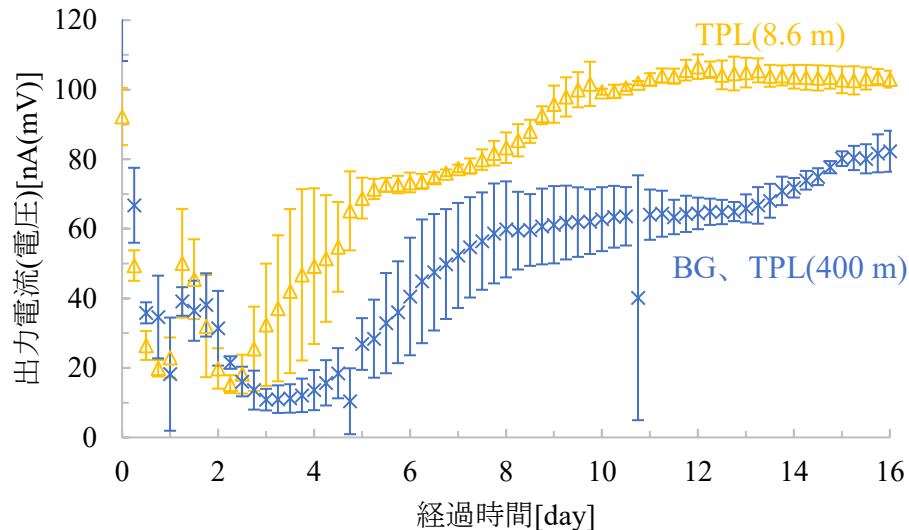


図 3-5 大強度トリチウム線源を利用した検出器出力測定実験結果。黄△印はトリチウムから 8.6 m(TPL)、青×印はトリチウムから約 400 m の位置(BG)での検出器出力信号の平均値を表す。誤差棒は標準偏差である。誤差の評価も含めて、 ^3H 近くに検出器を設置すると、出力信号が増大することが明らかになった。

3.3. 原子炉および大強度トリチウム線源を用いた実験結果に対する考察

過去に行われた ATR での実験結果と今回の PWR およびトリチウムを用いた実験結果をまとめて図 3-6 に示す。同図ではバックグラウンド(BG)のデータは取り扱いを簡単にするために、代表して PWR 実験のものを使用している。また各実験における条件を表 3-1 にまとめる。

まず TPL 実験において、 ^3H 由来のニュートリノ束は、 ^3H の質量および比放射能から $8.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ と計算される。検出器の有感な幾何学的断面積(生糸の存在する領域)は 2 cm^2 程度である。よって、この領域に入射してくるすべてのニュートリノが 1 個の電荷生成を伴う反応を検出器内で起こすと仮定すると反応率は $1.6 \times 10^{10} [\text{s}^{-1}]$ と見積もられる。電子 1 個の電荷は電気素量 e で、その値は約 1.6×10^{-19} であるため 1 秒間に検出器に流れられる最大の電荷すなわち電流は 2.6 nA 程度になる。しかし実際の実出力電流は 100 nA のオーダーであるため、これと合致しない。このことから、検出器は ^3H 由来の入射ニュートリノをとらえて出力増大しているわけではないことが明らかになった。この結果から、トリチウム線源からのニュートリノではなく、 ^3H 由来の弱い相互作用場の影響によって環境ニュートリノの検出効率が上昇した可能性が示唆される。1.4.1 節の原子炉ニュートリノ振動距離の解析で原子炉付近において弱い相互作用の質量生成場 B_H が高いことが示唆されたが、大量のトリチウムの傍でも同場が同様に高いと推定される。

第4章の検出器出力信号の解析では原子炉やトリチウム線源由来のニュートリノ束ではなく、弱い相互作用場の生成に関係のある核種の原子数に着目して定量的な議論を行う。

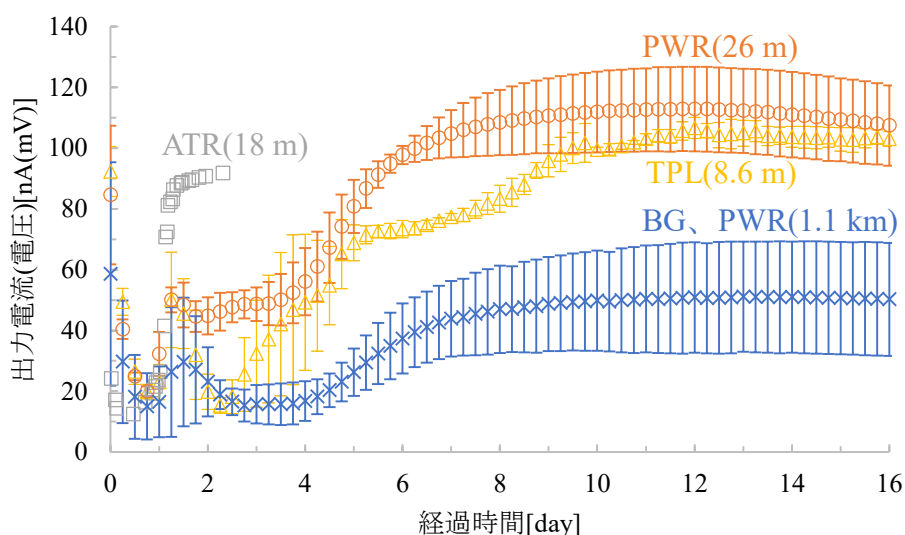


図 3-6 原子炉およびトリチウムを利用した検出器出力測定実験結果。灰□印は ATR から 18 m の位置での検出器出力信号、赤○印は PWR から 26 m、黄△印はトリチウムから 8.6 m(TPL)、青×印は PWR から約 1.1 km の位置(BG)での検出器出力信号の平均値を表す。誤差棒は標準偏差である。PWR のデータが TPL よりも少し高く、それら 2 つは BG よりは高く、ATR よりは低い結果となった。

表 3-1 3つの実験における、原子炉/トリチウムからの距離、距離 2 乗で規格化した原子炉熱出力、 ${}^3\text{H} \cdot {}^{241}\text{Pu}$ 由来の低エネルギーニュートリノ束、距離 2 乗で規格化した ${}^3\text{H}$ の原子数。ATR と TPL における ${}^3\text{H}$ 由来のニュートリノ束および、ATR と PWR における ${}^{241}\text{Pu}$ 由来のニュートリノ束は同程度である。

	ATR	PWR	TPL
距離, d [m]	18	26	8.6
熱出力/d ² [MW/m ²]	1.7	5.0	-
${}^3\text{H}$ 由来のニュートリノ束 [cm ⁻² s ⁻¹]/10 ¹⁰	1.1	0.16	0.82
${}^{241}\text{Pu}$ 由来のニュートリノ束 [cm ⁻² s ⁻¹]/10 ¹⁰	2.6	2.0	-
${}^3\text{H}$ の原子数/d ² [m ⁻²]/10 ²²	6.2	0.89	4.6

3.4. 検出器出力信号増大効果のトリチウム線源からの距離依存性実験

前節の考察から、検出器出力の増大は原子炉やトリチウム線源から入射する反ニュートリノ束ではなく、核種内に存在する反ニュートリノ由来の弱い相互作用場によるものである可能性が示唆された。そこで、トリチウム線源からの距離が異なる位置に検出器を設置し、それぞれの検出器出力信号がどのようになるかを調べる実験を行った。

実験は 3.2 節同様大強度トリチウム線源を利用して、TPL 内で行った。検出器設置場所は線源に近いところから順に 2.4 m、8.6 m、16.8 m、400 m の 4 か所である。8.6 m、400 m の位置は 3.2 節の実験と同一で、新たに 2.4 m、16.8 m の位置に増設した。今回の実験では各設置場所に 4 台、計 16 台の検出器を設置している。図 3-7 に線源に近い 3 か所の検出器の設置場所を示す。それぞれの設置個所の検出器が、互いに他の検出器の影に隠れないように配置している。これは前部に設置した検出器による遮蔽効果を抑制するためである。

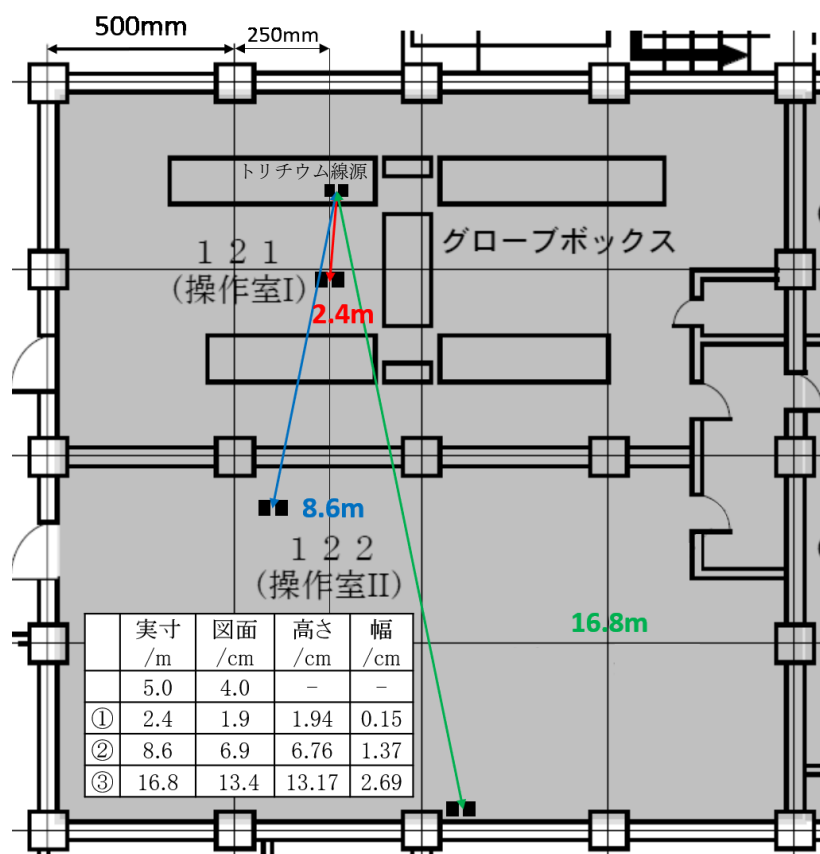


図 3-7 トリチウム線源からの距離依存性検証実験の検出器配置場所の概要図。検出器が互いにトリチウム線源からの影響を遮蔽しないような配置にしている。

実験結果を図 3-8 に示す。ただし、BG のデータは見やすさを考慮して、PWR のときの BG データ(PWR, 1.1 km)の全体を 1.2 倍したものを表示している。1.2 倍すると今回取得した TPL の 400 m 位置のデータと同程度になる。誤差棒は標準偏差を表している。

実験結果から、トリチウム線源に近い方で検出器出力信号が高いことが明らかになった。このことから、やはりトリチウム線源から検出器出力信号が影響を受けており、それは距離に依存していることが推定される。しかし誤差の範囲内にとどまっており、あくまでその兆候があるという程度にとどまっている。また、16.8 m のデータは 5 日目付近から急激に出力信号が増大し、13 日目付近でその信号が今度は急激に減少している。この原因については、後に第 4 章の解析を踏まえて議論する。

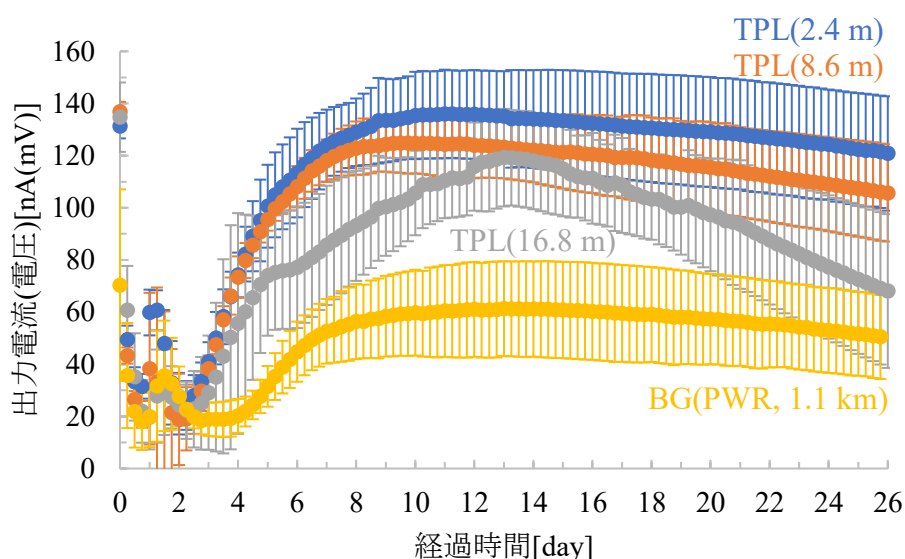


図 3-8 トリチウム線源からの距離依存性検証実験の結果。線源に近い検出器の出力信号ほど大きい結果が得られた。ただし誤差が大きく、その兆候をとらえるにとどまる。また、16.8 m の位置の信号は約 5 日目付近で急激に増大し、約 13 日目から急激に減少している。

3.5. 大強度トリチウム線源を用いた実験から得られた検出器出力信号特性

大強度トリチウム線源を用いた実験から以下のことが明らかになった。

- (1) 原子炉でなくとも、 ^3H の近くに設置するだけで検出器出力信号が増大する
- (2) ^3H 由来の入射ニュートリノ束では検出器出力信号が生成できない

(3) ${}^3\text{H}$ に近いほど検出器出力信号上昇速度が増大する傾向がある

これらの実験事実から、 ${}^3\text{H}$ から生成される弱い相互作用場が、その線源からの距離に依存して検出器に作用し、検出器信号が増大している可能性が示唆される。

第4章 検出器出力信号の電気化学的解析

1.4節において、弱い相互作用の内部運動に関する仮定を導入し、ニュートリノに結合しうるフェルミ粒子 ξ を想定した。本章では、これらの議論に基づいて検出器の動作原理を説明し、検出器出力信号の電気化学的解析を試みる。

4.1. 検出器の出力信号生成原理

これまでの実験結果から、①検出器内で生糸(特にセリシン)が重要な役割を果たしている、② ${}^3\text{H}$ や ${}^{241}\text{Pu}$ 等の低エネルギーベータ崩壊核種の近くに設置すると出力信号が増大する。そこで、①から生糸が弱い相互作用場(質量生成場 B_{H})を生成すること、②から ${}^3\text{H}$ や ${}^{241}\text{Pu}$ 付近で生糸の生成する B_{H} が増強されることが推定される。検出器は基本的に環境ニュートリノ $\nu\xi$ と反応しているが、 ${}^3\text{H}$ や ${}^{241}\text{Pu}$ 付近に設置すると検出効率が上昇して出力信号が増大しているものと理解される。以上のシナリオに基づく検出原理の概要図を図 4-1 に示す。

まず、惑星間で質量生成場 B_{H} が低い場合、ニュートリノは環境ニュートリノ $\nu\xi$ として存在している可能性がある。地球上での環境ニュートリノ束は、地殻や太陽由来の直接のニュートリノ束よりも大きいと考えられる。通常のニュートリノは相互作用断面積が小さく、飛来してもほとんどが通り抜けて行く。これに対して環境ニュートリノ $\nu\xi$ は V 型スピンの ξ を持ち全角運動量 $-1/2$ となっており、V 型の磁場の影響を受ける。このことから、環境ニュートリノは、地磁気に補足されて地球上に定常的に多量に蓄積して存在しているものと考えられる。環境ニュートリノ $\nu\xi$ が検出器内に入射すると、生糸周辺の領域(図 4-1 の"生糸&純水"の領域)で質量生成場 B_{H} の影響を受けて、ニュートリノ ν の方は質量が増大し減速するが、 ξ の方は B_{H} から影響を受けずに飛行するため、運動の不一致が起こり分離する。この分離を起こす場 B_{H} は原子炉やトリチウム線源で増強されるが、基本的には生糸(特にセリシン)の周りに生成されていると考えられる。生糸が生成する場 B_{H} は、自然界の B_{H} を基にトラップされたニュートリノなどで増強した生糸内部に由来のもの、もしくは生糸内に存在するベータ崩壊核種のカリウム 40 が生成していると考えられる。

環境ニュートリノ $\nu\xi$ から ξ の分離が起こると、ニュートリノ ν はそのまま検出器をすり抜けていくが、 ξ は単体で質量を生成できないため、検出器内に豊富に存在するレプトンである電子に結合してボソンの電子系 $e^-\xi$ を生成する。このボソンの電子の存在が、電子のフェルミオンとしての統計的な制約を超えて、反応を進行させていると考えられる。また、 $e^-\xi$ の寿命に応じて、検出器内での長期的・定常的な酸化還元反応の挙動を説明することができる。

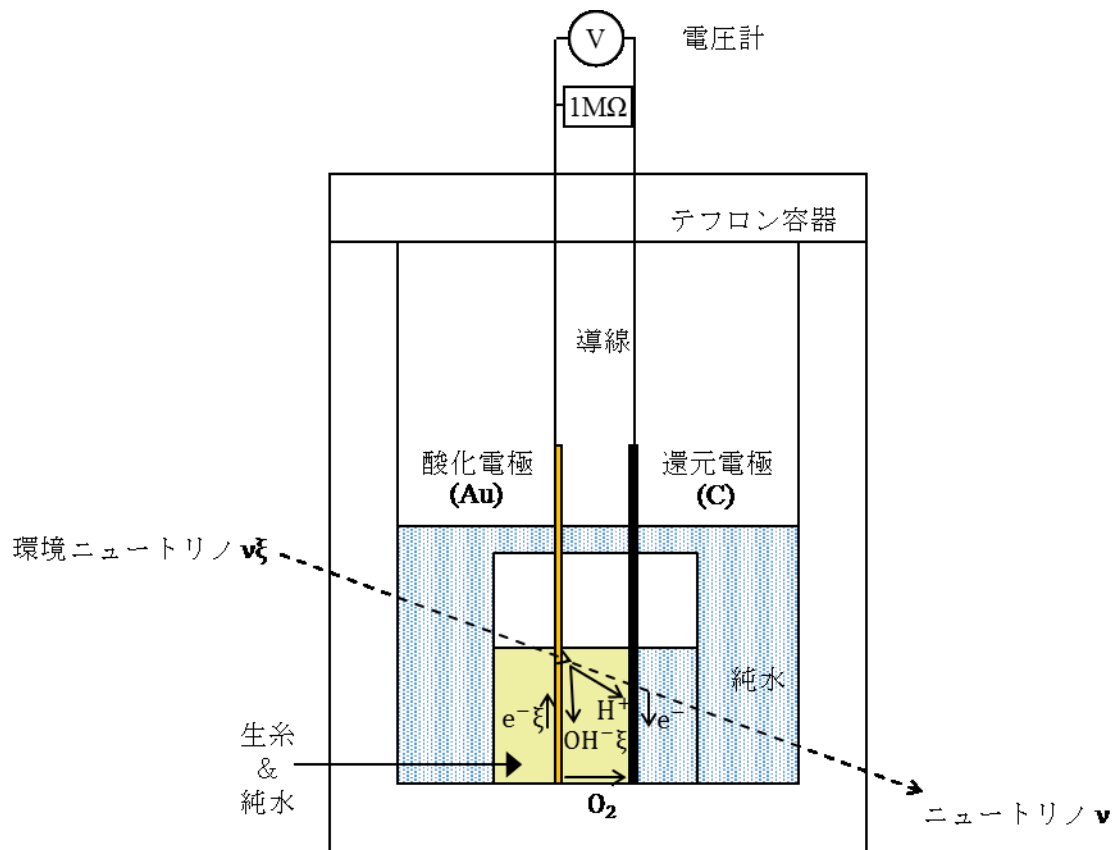


図 4-1 検出原理の概要図。

反応プロセスとして、 $\nu\xi$ から分離した ξ が豊富に存在する水分子内の電子と結合して水分子へのエネルギー付与が起こり、次式の解離性電離反応が起これと考えられる。



厳密には上式のように水中の水素イオンはオキシニウムイオンとして存在しているが、以降は簡単のために単に水素イオンとして取り扱う。このときの分離反応式は



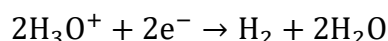
となる。この反応は、ニュートリ ν に ξ が付随して重くなっていた $\nu\xi$ の質量がさらに外部 B_H の影響で重くなることで特に起こりやすくなっており、電磁相互作用の断面積に近い大きさで反応すると考えられる。ここでは精製水中には純粋な水のみだけではなく、水素が重水素に置き換わった重水も含まれるが、その存在量は 150 ppm 程度と少ないため、重水素の電気化学反応については考慮しない。同式で $\text{OH}^{-\xi}$ は、 OH^- 内の電子に ξ が結合していることを表す。通常の水素イオンと水酸化物イオンであれば、 $\text{H}^+ + \text{OH}^- \rightarrow$

H₂Oにより熱平衡に向けて容易に再結合を起こし、イオン対として高濃度の状態は長く続かない。一般的に再結合の寿命は 36 μs 程度とされている。これに対して、OH^{-ξ}の外側の電子がe^{-ξ}としてスピン和がゼロのボソンを構成していれば、O-H 間の共有結合に必須な電子スピン対を生成できないので、再結合がほぼ完全に禁止されることが期待される。結局この再結合の寿命はe^{-ξ}の寿命で決定されることになる。本研究ではこの寿命もパラメータとして扱い後述の検出器出力信号解析を行うが、実験結果からその寿命は少なくとも数週間以上と 36 μs よりも十分に長いものと推定される。

(4.1)式によって生成された OH^{-ξ}および H⁺ は各電極まで拡散し、酸化および還元反応を起こす。還元電極(炭素電極)では以下の発熱反応が起こる。



この反応は発熱反応ではあるが酸素を一旦分離して反応が進むため、活性化エネルギーが高く、比較的起こりにくい反応とも考えられる。しかし 2.6 節の溶存酸素濃度測定実験から還元電極では実際に酸素消費反応が起こっていることが明らかになっている。また、この反応が起こらない場合、通常は水素ガスの生成反応



が起こることが想定されるが、検出器内の溶存水素測定を行ったところ検出限界 0.01 ppm 以下であったため、この反応をここでは考慮しない。

(4.2)式で生成され拡散してきた H⁺ は、電極周辺に存在する酸素分子を消費しながら反応が進行する。(4.2)式の電子は電極から供給される分であり、このため電極間の配線回路から還元電極に電子が流れ込みそれが溶液中に戻ることになる。反応によって生成される水分子はそのまま検出器溶液に戻る。この発熱反応によって発生するエネルギーは 1.23 eV である^[37]。一方酸化電極(金電極)では以下の酸化反応が起こる。



この反応によって酸素分子が生成されるが、これも溶存酸素測定実験によって明らかになっていた。この酸素は生成された後に酸素濃度勾配に従って還元電極側に拡散することになる。この反応で電極内に移送される電子は通常の電子ではなく、ξと結合したボソンの電子e^{-ξ}と考えられる。ξが存在しない場合の反応4OH⁻ → 2H₂O + 4e⁻ + O₂では 0.40 eV^[37]の吸熱反応である。この反応は外部からのエネルギー付与、例えばバイアス電圧の印加などが無いと進行しない。これに対して(4.3)式の反応は、電極に移送される電子がボソンのためフェルミ統計ではなく、ボース統計に従うことになる。通常の電子であればフェルミ統計に従って、電極表面のフェルミ準位以上のエネルギー順位にしか移送され得ないため 0.40 eV のエネルギーが必要になるが、ボース統計ならばフ

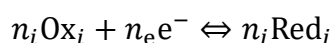
エルミ準位より低いエネルギー状態に入ることができるのでこのエネルギーを必要としないと理解される。この結果、(4.3)式の反応は吸熱反応ではなくなり、容易に起こり得る酸化反応になると推定される。

(4.1)式の解離性電離によるイオン生成反応、その両イオンによる(4.2)式および(4.3)式の電極における酸化還元反応が続けて起こり、2つの電極の酸化還元電位の違いによって起電力が発生し、電極間に接続された回路に電流が流れることで出力信号として記録することができると考えられる。検出器は電極間にバイアス電圧をかけずに自発的な反応で出力電流が生じ電力を発生しているため、外部電源を必要としない。

4.2. 電気化学的解析模型

前節の検出原理に基づいて、実際の出力電流を計算によって見積もる。最も単純には、(4.1)式の解離性電離反応の発生率で生成される電流が分かるため、電流値の推定が可能になる。例えば 100 nA の電流を回路に流すためには電極表面で 1 秒間当たり 100 nC の電荷が移動する必要がある。これは電気素量を使って、電子 6.2×10^{11} 個相当の電荷とわかる。つまり $6.2 \times 10^{11} [\text{s}^{-1}]$ の反応率で電離反応が起これば 100 nA の電流が流れる程度と見積もることができる。ただし、実際はイオンが生成されてから電極で反応を起こすまで、拡散による時間差が存在する。また、電極付近に存在するイオンの濃度の時間変化に依存して出力信号は時間変化する。さらに、電極での反応には酸素濃度もかかわっているため、イオンの生成反応率だけではもはや議論できなくなる。これらを全て考慮した出力信号の解析が必要となる。

一般的に



の反応を考える場合、この反応が起こる電極では還元反応(右向き)と酸化反応(左向き)に起因する電流がそれぞれ逆方向に流れる。ここで n_i, n_e, n_j は反応次数、Ox は酸化体、Red は還元体である。ただし n_e は自由な値を取り得て、 n_i, n_j が n_e との比で決まる。もう片方の電極でも同じように流れる電流が決まる。ひとつの酸化還元反応の右向き反応と左向き反応の速度定数は決まっているため、それぞれの電極の反応で流れる電流が決まる。この電流を 2 つの電極で比較して、より小さい方の電流が最終的に外部回路に流れる。このため電流を決める場合は片方の電極(律速側)の反応に注目すれば良い。電極で起こる反応の種類が 1 種類ではない場合も同じように律速側の電極を決めるが、もう片方の電極反応は規格化して本来流せる電流の比で実際に起こる反応の程度を決める。

電極で起こる還元反応と酸化反応に起因する電流密度をそれぞれ j_a, j_c とすると電極全体での電流密度は

$$j = j_a + j_c$$

となる。それぞれの電流密度は

$$\begin{cases} j_a = -n_e F v_a = -n_e e k_a \prod_i c_i^{v_i} \\ j_c = n_e F v_c = n_e e k_c \prod_j c_j^{v_j} \end{cases}$$

と表される。 e は電気素量、 v, c, k, v はそれぞれ反応速度、反応物濃度[cm^{-3}]、速度定数、反応次数である。速度定数は

$$\begin{cases} k_a = P_a t \exp \left\{ -\frac{\Delta G_a^{0\neq} - (1 - \alpha)n_e e E}{k_B T} \right\} \\ k_c = P_c t \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq} + \alpha n_e e E}{k_B T} \right\} \end{cases}$$

である。反応次数は簡単な酸化還元反応の場合は、その反応物の量論数と等しくなることもあるが、一般的には量論数と関係無い定数である。 $P, t, \Delta G^{0\neq}, E$ はそれぞれ前指数定数、電極厚さ、反応の活性化エネルギー、電極電位である。以上の式をまとめて電流密度を計算するのがバトラー・ボルマーの式^[38]である。

本検出器では金電極が酸化電極、炭素電極が還元電極となっている。前節で述べたように金電極ではボソンの電子の効果で反応が進むため、金電極での反応は十分な反応速度で進行し、律速反応は炭素極板の反応であると仮定している。また、金電極と溶液間の電位差は常に零であるとしている。このときの電流は

$$I = jA = 4An_{\text{stc}}eP_c t \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq} + \alpha n_{\text{stc}}n_e e E}{k_B T} \right\} c_{\text{H}^+}^{v_{\text{H}^+}} c_{\text{O}_2}^{v_{\text{O}_2}} \quad (4.4)$$

となるが、積の形で表現できるパラメータをまとめると

$$I = P'_c \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq} + \alpha' E}{k_B T} \right\} c_{\text{H}^+}^{v_{\text{H}^+}} c_{\text{O}_2}^{v_{\text{O}_2}} \quad (4.5)$$

と書き換えられる。 A は電極の表面積である。また電極電位については検出器出力電流と

$$E = E_0 - R_{\text{int}} I$$

の関係にあるため

$$\begin{aligned}
 I &= P'_c c_{\text{H}^+}^{\nu_{\text{H}^+}} c_{\text{O}_2}^{\nu_{\text{O}_2}} \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq} + \alpha'(E_0 - R_{\text{int}}I)}{k_B T} \right\} \\
 &= P'_c c_{\text{H}^+}^{\nu_{\text{H}^+}} c_{\text{O}_2}^{\nu_{\text{O}_2}} \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq} + \alpha'E_0}{k_B T} \right\} \exp \left\{ \frac{\alpha'R_{\text{int}}I}{k_B T} \right\} \\
 &= P'_c c_{\text{H}^+}^{\nu_{\text{H}^+}} c_{\text{O}_2}^{\nu_{\text{O}_2}} \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq'}}{k_B T} \right\} \exp \left\{ \frac{R'_{\text{int}}I}{k_B T} \right\}
 \end{aligned}$$

となるが、温度が一定の場合は

$$I = P'' c_{\text{H}^+}^{\nu_{\text{H}^+}} c_{\text{O}_2}^{\nu_{\text{O}_2}} \exp\{R''I\} \quad (4.6)$$

と簡略化される。調整パラメータは P'' , ν_{H^+} , ν_{O_2} , R'' の 4 つである。反応物の濃度は測定値からの推定及び微分方程式を使った時間発展計算で決定する^[39]。

時間の依存性を頭に書くと

$$I(t) = P'_c [c_{\text{H}^+}(t)]^{\nu_{\text{H}^+}} [c_{\text{O}_2}(t)]^{\nu_{\text{O}_2}} \exp \left\{ -\frac{\Delta G_c^{0\neq'}}{k_B T} \right\} \exp \left\{ \frac{R'_{\text{int}}I(t)}{k_B T} \right\}$$

となる。

温度依存のない(4.6)式で、解析を簡単にするために反応次数を反応の量論数と同一と仮定すると電流は

$$I(t) = P'[c_{\text{H}^+}(t)]^4 [c_{\text{O}_2}(t)] \exp\{-\alpha'I(t)\} \quad (4.7)$$

となる。ここでは

$$P' = AP \exp \left(-\frac{\Delta G}{k_B T} \right) \quad (4.8)$$

$$\alpha' = 4\alpha R/k_B T \quad (4.9)$$

である。つまり、基本的に電流は水素イオン濃度 $[\text{cm}^{-3}]$ の 4 乗および酸素濃度 $[\text{cm}^{-3}]$ の積に比例して大きくなる。 P, α' が解析の際のフィッティングパラメータになる。

(4.7)式を用いて還元電極表面での酸化還元反応から、回路に流れる電流を計算できるが、そのためには還元電極表面の水素イオン濃度および、酸素濃度の値が必要となる。これらは実際の検出器の大きさを考慮して、拡散方程式によって決定する。拡散方程式

は、電極間の領域を 18 個の小領域に分けて、1 次元拡散方程式

$$\frac{dC_X(t, x)}{dt} = D_X \frac{d^2 C_X(t, x)}{dx^2} + Q'_X \pm \frac{I(t)}{n_X e \Delta V} \quad (4.10)$$

を用いた。電極間の距離は 9 mm であるため、小領域の長さは 0.5 mm となっている。実際の検出器は 3 次元体系だが、電極表面に垂直な方向以外は対称的な形のため、簡単のために 1 次元拡散方程式を用いている。また、実際は電極間だけではなく、その外の領域も存在するが、実際にイオン類が生成・消費されるのは電極間の領域が主であり、その外の領域を加味しても計算結果が 1 % 以下しか変わらなかったため、近似的に電極間の領域のみを考慮して計算を行った。X は H⁺ もしくは O₂ のどちらかを表す。C_X(t, x) は濃度 [cm⁻³]、D_X は拡散係数 [cm²s⁻¹]、Q'_X は生成項 [cm⁻³s⁻¹]、I(t) は電流、n_X は H⁺ の場合は 4、O₂ の場合は 1、e は電気素量、ΔV は小領域の体積である。拡散係数は D_{H⁺} = 7.6 × 10⁻⁵ [cm²/s], D_{O₂} = 2.1 × 10⁻⁵ [cm²/s] を用いた^[40,41]。基本的に、左辺がある小領域の、ある時刻における濃度変化、右辺第 1 項が隣の小領域からの拡散項、右辺第 2 項が生成・消費項、右辺第 3 項が電流の流れによる生成・消費項である。右辺第 3 項は電極に隣接する両端の小領域にのみ存在し、電流生成に伴って(4.2)式や(4.3)式によって生成・消費される水素イオンや酸素を表している。右辺第 2 項の生成・消費項は、酸素に関しては存在しない。水素イオンは(4.1)式の電離反応によって生成される項と、ξ 粒子の寿命で再結合によって消費される項の線形和

$$Q'_X = Q_X - \frac{1}{\tau_\xi} C_{H^+}(t, x) \quad (4.11)$$

である。再結合による消費は、その時に存在する水素イオン濃度に比例するとした。

この拡散方程式では水素イオン濃度と酸素濃度しか計算していないが、水酸化物イオン濃度は、水素イオン濃度と対称な分布であると仮定している。

計算の際の時間ステップは 1 秒に設定した。このとき、計算の情報伝達速度は

$$C = \frac{\Delta x^2}{\Delta t} = 2.5 \times 10^{-3} \text{ [cm}^2/\text{s]}$$

となって、拡散係数よりも 2 桁ほど早い。これによって、計算の情報伝達が拡散よりも早く行われる、つまりクーラン条件^[42]を満たしていることになる。この条件を満たしているため、正常に拡散が計算できる。

4.3. 検出器出力電流の電気化学的解析

(4.7)式および、(4.10)式を用いて、検出器出力信号の解析を行った。解析を行ったのは、ATR、PWR、TPL での実験および、バックグラウンド(BG)データの4つである。計算された還元電極表面での酸素濃度変化を図 4-2 に示す。酸素濃度の変化は、生成項が存在しないため、4つのデータの場合で大きくは変わらない。また、最初に大きく減少した後、一定値に達している様子が、溶存酸素測定結果の振舞と一致する。

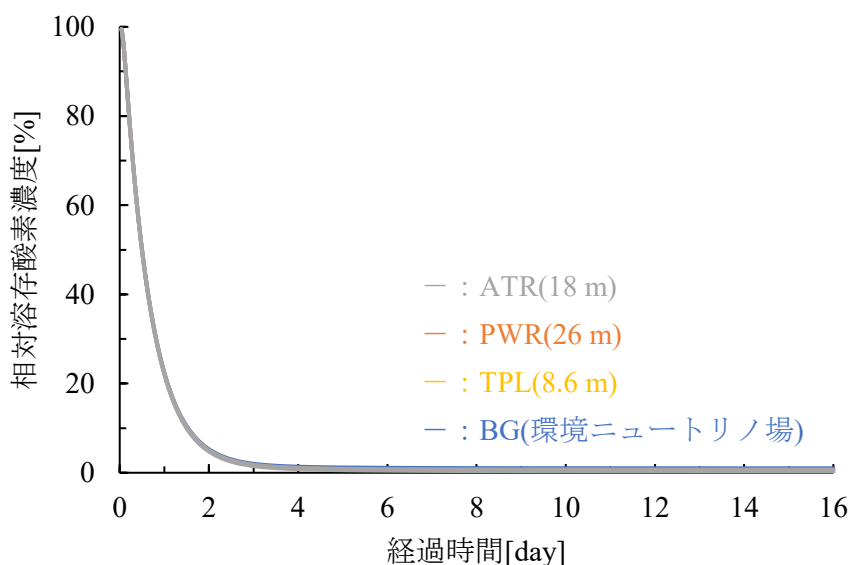


図 4-2 拡散方程式によって計算された還元電極表面の溶存酸素濃度時間変化。4つの計算結果が示されているが、ほとんど重なっている。酸素濃度変化はどの実験条件でも大きくは変わらない。

水素イオン濃度の変化を図 4-3 に示す。一方、水素イオン濃度については4つのデータの場合で異なる生成項をパラメータとして設定した。これは原子炉やトリチウム付近に設置すると、水の解離性電離反応の反応率が上昇することに対応する。本解析ではこの反応率 Q_{H^+} が最も重要なパラメータとなっている。4つのデータで異なるのはこの Q_{H^+} のみであり、この1つのパラメータだけで全ての実験結果を矛盾なく説明している。各実験条件で設定した Q_{H^+} は表 4-1 にまとめている。

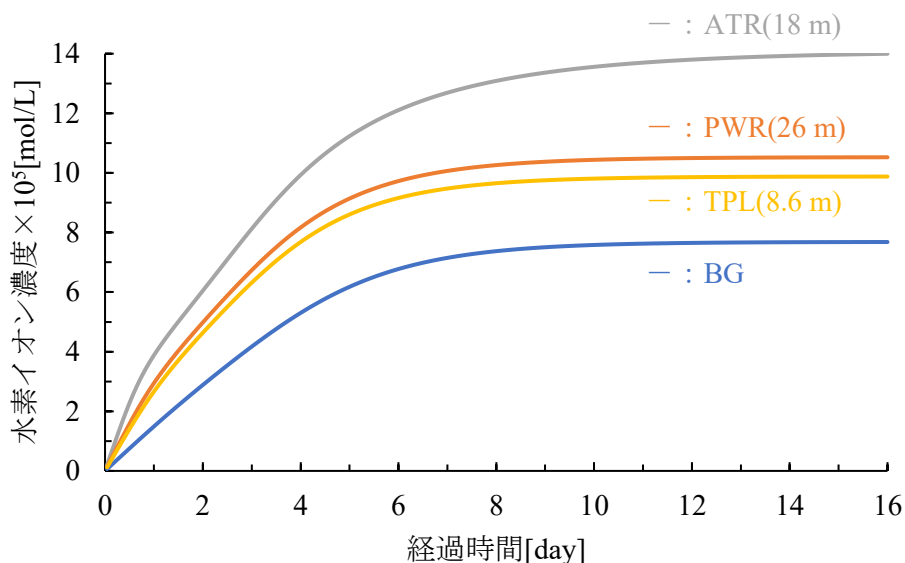


図 4-3 拡散方程式によって計算された還元電極表面の水素イオン濃度時間変化。4 つの実験で異なる水素イオンの生成率を設定している。ATR の場合が最も高く、BG の場合が最も小さな値で、PWR、TPL はその間の値になっている。最初の 1 週間程度は水素イオン濃度が増加し、その後は電極での消費との釣り合いで平衡値に達している。

表 4-1 4 つの実験での水素イオン生成率($10^{11} [\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}]$)。それぞれ適切な値を設定し、水素イオン濃度の生成項を決定することで、図 5-2 の水素イオン濃度時間変化を計算した。

$Q_{\text{H}^+\text{ATR}}$	$Q_{\text{H}^+\text{PWR}}$	$Q_{\text{H}^+\text{TPL}}$	$Q_{\text{H}^+\text{BG}}$
3.7	2.3	2.0	1.1

以上の酸素濃度および水素イオン濃度の計算結果を用いて検出器出力電流を計算した。計算結果を図 4-4 に示す。このとき、フィッティングパラメータは $P' = 6 \times 10^{29} [\text{A} \cdot (\text{mol/L})^5]$ 、 $\alpha' = 0.001$ と設定した。移動係数 α は回路の抵抗値 $1 \text{ M}\Omega$ を用いて、 0.06 と見積もられた。

弱い相互作用に関する仮定および、電気化学的な解析を用いて、実験結果を矛盾なく説明できることが明らかになった。ただし、本解析では、測定開始後 1 日~2 日に現れるピークは無視している。これは弱い相互作用に関したのではなく、生糸から溶出した不純物イオンの酸化反応由来の電流ピークと考えられる。

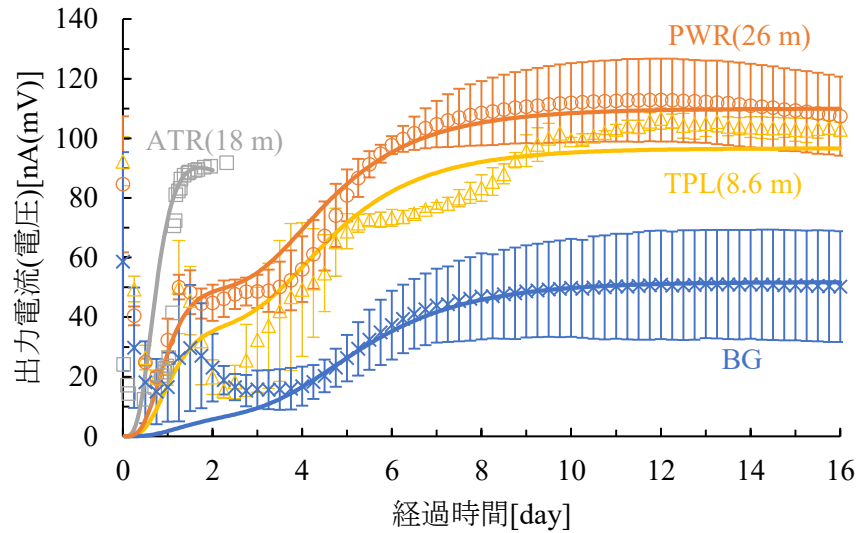


図 4-4 拡散方程式によって計算された還元電極表面の酸素濃度および水素イオン濃度時間変化を用いて計算した検出器出力電流時間変化。4 つの実験結果解析で異なるのは水素イオン生成率のみである。

4.4. 検出器出力信号へのトリチウムの寄与の見積もり

電気化学的な解析によって、4 つの実験における検出器出力信号の振る舞いを説明することが可能になった。また、トリチウムを用いた実験によってトリチウムだけでも検出器出力信号増大効果があることが明らかになったが、そのほかのベータ崩壊核種がどの程度寄与しているかはまだわかっていない。そこで、本節ではトリチウムや他の低エネルギーベータ崩壊核種が検出器出力信号増大に、それぞれどの程度寄与しているのかを見積もる。

原子炉燃料内に存在する低エネルギーベータ崩壊核種は多様で、複雑であるが、存在数から考えると ^{241}Pu (20.8 keV) が支配的である。他にも ^{103}Ru (22.6 keV) や ^{151}Sm (77 keV) 等も存在するが、 ^{241}Pu の存在数よりも 1~2 桁少ないため、今回は無視する。このことから、原子炉では核燃料中の ^{241}Pu と減速材または核燃料中の ^3H が、質量生成場 B_{H} を発生する主な核種となる。

^{241}Pu や ^3H の出力信号への寄与を見積もるために、ATR、PWR、TPL の実験結果を説明するために設定した生成率 Q_{H^+} が重要になるが、この生成率の中に BG (環境中ニュートリノ場) での生成率寄与分も含まれているため、その値を差し引いた

$$Q_{\text{H}^+j=1-3}^{\text{inc}} = Q_{\text{H}^+j=1-3} - Q_{\text{H}^+\text{BG}}$$

が重要になる。ここでは $j = 1 - 3$ にそれぞれ ATR、PWR、TPL が対応している。この $Q_{H^+j}^{inc}$ の値を表 4-2 にまとめる。

表 4-2 ATR、PWR、TPL 実験での $Q_{H^+j}^{inc}$ (10^{11} [$\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$])。

$Q_{H^+ATR}^{inc}$	$Q_{H^+PWR}^{inc}$	$Q_{H^+TPL}^{inc}$
2.6	1.2	0.91

$Q_{H^+j}^{inc}$ を用いて、検出器出力信号への ^{241}Pu と ^3H の寄与の程度を見積もる際には、それぞれの寄与の線形結合として $Q_{H^+j}^{inc}$ を表現する以下の式を用いた。

$$Q_{H^+j}^{inc} = a_H \left(\frac{N_H}{d^2} \right)_j + a_{\text{Pu}} \left(\frac{N_{\text{Pu}}}{d^2} \right)_j \quad (4.12)$$

ここでは N_H, N_{Pu} が ^3H と ^{241}Pu それぞれの原子核数、 d が原子炉もしくはトリチウム線源からの距離、 a_H, a_{Pu} がそれぞれの $Q_{H^+j}^{inc}$ への寄与を表す係数である。この見積もりでは、 B_H が距離の 2 乗に反比例して減弱すると仮定している。また、この式を用いて寄与を見積もった場合の計算値の標準偏差を

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{2} \sum_{j=1-3} \left\{ Q_{H^+j}^{inc} - a_H \left(\frac{N_H}{d^2} \right)_j - a_{\text{Pu}} \left(\frac{N_{\text{Pu}}}{d^2} \right)_j \right\}^2} \quad (4.13)$$

として評価した。(4.12)式を用いた見積もりによって、それぞれの寄与を表す係数が、 $a_H = 3.4 \times 10^{11}$ 、 $a_{\text{Pu}} = 0.019 \times 10^{11}$ と求められた。この計算から、 $a_{\text{Pu}}/a_H = 5.5 \times 10^{-3}$ 、すなわち ^{241}Pu の寄与が ^3H の寄与の 1/200 程度しかないことが明らかになった。また(4.13)式で表される標準偏差は $\sigma = 0.13 \times 10^{-11}$ となった。これは $Q_{H^+TPL}^{inc}$ の 14%に相当する。つまり、(4.12)式を用いた見積もり結果は、実験結果を 14%程度の誤差で再現できたということである。実際は ^{241}Pu 以外の核種の存在すること、また、BG

データは各実験時のもので少し異なることを加味すると、14%よりも小さな誤差で実験結果を再現できるようになると推定される。たとえばBGデータを同一のデータではなく、各実験時のもので評価すると、計算値の標準偏差 σ は2%まで小さくなる。

^{241}Pu (20.8 keV)、 ^3H (18.6 keV)のどちらも同程度の最大エネルギーを持つ低エネルギーベータ崩壊核種であるにもかかわらず、1/200という大きな寄与率の差が生まれたのは、その内部に持つ反ニュートリノの状態に起因したものであると考えられる。どちらの核種もベータ崩壊によって反電子ニュートリノを放出するため、崩壊の前はその反電子ニュートリノを中性子中のダウンクォーク内部に保持していることになる。

1.4.1 節の計算で説明したように、この反ニュートリノこそが本質的な B_H の発生源であると考えられる。そのため、この反ニュートリノとしての特性がベータ崩壊前にどれだけ原子核の外部に漏れ出ているかという点で、検出器出力への寄与に差が出てくるものと推定される。この状況を典型的に表す量がAV型の結合定数 g_A である。これは標準理論における弱い相互作用に導入されている量で、ベータ崩壊におけるV-AV型のカレントを計算する際に、その核種の実効的なAV型カレントを記述するパラメータである。V型カレントはCVC仮説^[43]によって結合定数 g_V を厳密に1とするのが慣例だが、 g_A の値は核種によって変動する。核子数 A によって変化する g_A の値を表5-3にまとめる^[44]。裸の中性子と ^3H の g_A はほぼ同一で、 A が大きくなるにつれて g_A も大きくなってゆく。 ^{241}Pu の $A\sim 250$ 等の重元素の領域は未だ実験値が存在しないが、 $g_A > 2$ と考えるのが自然である。重元素で g_A が大きくなるのは多数に存在する核子の影響によるものだと考えられる。つまり、軽い核子ほど核子からの影響が小さいということになる。これによって ^{241}Pu 内に存在する反ニュートリノよりも、 ^3H 内に存在するものの方が、より外部に影響を与えられる状態にあることになる。このため、 ^3H 内の反ニュートリノ由来の B_H の影響の方が ^{241}Pu に比べて約200倍大きかったものと推定される。

表 4-3 AV型結合定数 g_A の核子数 A に依存した変化^[44]。基本的に1よりも大きい値であり、 A が大きくなるにつれて g_A も大きくなる。原子核内に存在する核子の影響で実効的な g_A が変動していると理解される。

A	g_A
1(中性子)	1.26
3(^3H)	1.247
~16	1.64
~96	1.75
~200	2

また、第 2 章のセリシン除去実験と合わせて考えると、セリシン内のカリウム 40 もトリチウムやプルトニウム 241 と同様に質量生成場を生成している可能性が示唆される。カリウム 40 の場合はベータマイナス崩壊(1.31 MeV)に加えてベータプラス崩壊(1.50 MeV)も可能だが、その崩壊エネルギーは MeV 領域と高い。しかし、ベータマイナス崩壊に加えてベータプラス崩壊も可能な点でトリチウム等と大きく異なっており、核内中性子と陽子のエネルギー状態が比較的近いことが、質量生成場の生成に関わっていると考えられる。

4.5. 質量生成場 B_H による検出器出力信号増大効果の距離依存性解析

3.4 節で行った検出器出力信号増大効果のトリチウム線源からの距離依存性検証実験では、誤差が大きいため明確な結果にはならなかったが、線源に近い検出器出力信号の方がより信号増大効果が大きい傾向があった。検出器出力信号の電気化学的解析で得られる水素イオン生成率 $Q_{H^+}^{inc}$ を用いて、この距離依存性を評価する。電気化学的解析は 4.3 節と同様に行った。計算結果を図 4-5 に、計算に用いた $Q_{H^+}^{inc}$ を表 4-4 に示す。 $Q_{H^+}^{inc}$ は線源に近いものから $Q_{H^+(2.4m)}^{inc}$, $Q_{H^+(8.6m)}^{inc}$, $Q_{H^+(16.8m)}^{inc}$, $Q_{H^+BG}^{inc}$ とする。

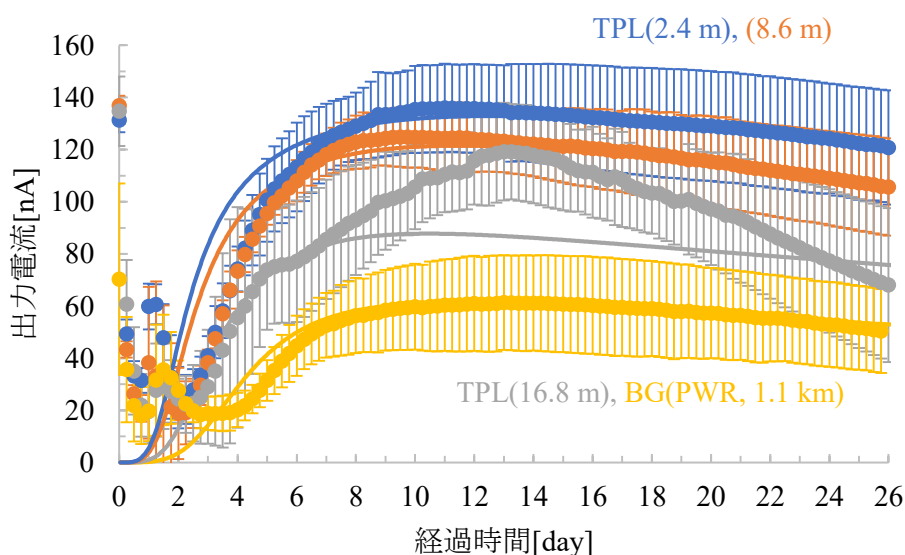


図 4-5 検出器出力信号増大効果のトリチウム線源からの距離依存性検証実験結果の電気化学的解析結果。おおむね計算によって実験データを再現できたが、16.8 m の位置の出力信号を上手く表現できていない。

表 4-4 検出器出力信号増大効果のトリチウム線源からの距離依存性検証実験結果解析での $Q_{H^+}^{inc}$ (10^{11} [$\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$])。

$Q_{H^+(2.4m)}^{inc}$	$Q_{H^+(8.6m)}^{inc}$	$Q_{H^+(16.8m)}^{inc}$	$Q_{H^+BG}^{inc}$
1.7	1.4	0.6	1.4

16.8 m の位置の出力信号は測定開始後約 5 日目から $Q_{H^+(16.8m)}^{inc}$ を増大させて、約 13 日目からその $Q_{H^+(16.8m)}^{inc}$ を減少させてもとの値に戻すと実験結果を再現できるため、基本的な $Q_{H^+(16.8m)}^{inc}$ は最初の 5 日目までと、最後に行き着く出力信号を再現する値に設定している。この 5 日目から 13 日目までの $Q_{H^+(16.8m)}^{inc}$ の変化の原因はまだ判明していない。再び同じ位置で同様の実験を行い、出力信号を再確認することが望まれる。

表 4-4 をもとに距離依存性を関数で表すと、トリチウム線源から検出器までの距離にほぼ線形的な負の相関で出力信号増大効果が弱まることが明らかになった。これは中性子の非相対論領域の低エネルギーを考える場合、反応断面積が速度(エネルギーの平方根)の逆数に比例する $1/v$ 則のアナロジーで次のように考えられる。まず反応断面積が $1/v$ に比例すると仮定するとニュートリノのエネルギーは質量が支配的になるが、質量は質量生成場の強度に比例するため

$$\sigma \propto \sqrt{B_H} \quad (4.14)$$

となる。質量生成場の強度は基本的には距離の 2 乗に反比例して減弱すると考えられるが、環境ニュートリノ束は無限ではないためどこかで検出器内の反応率が飽和することが想定される。これらのことから

$$\sqrt{B_H} \propto \sqrt{\frac{1}{(d + d_{\text{sat}})^2} + \frac{1}{d_{\text{BG}}^2}} \quad (4.15)$$

と仮定できる。ここで $d, d_{\text{sat}}, d_{\text{BG}}$ はそれぞれ質量生成場発生源からの距離、反応率の飽和を示すための実効距離パラメータ、バックグラウンドに存在する質量生成場の効果を示す実効距離パラメータである。 d_{sat} が十分大きいとして近似を用いると

$$\sqrt{\frac{1}{(d + d_{\text{sat}})^2} + \frac{1}{d_{\text{BG}}^2}} \approx \frac{1}{d_{\text{sat}}} - \frac{d}{d_{\text{BG}}^2} + \frac{d_{\text{sat}}}{2d_{\text{BG}}^2} \quad (4.16)$$

となるため

$$\sigma - \sigma_{\text{BG}} \propto \left(\frac{1}{d_{\text{sat}}} - \frac{d}{d_{\text{BG}}^2} + \frac{d_{\text{sat}}}{2d_{\text{BG}}^2} \right) - \frac{1}{d_{\text{BG}}} \quad (4.17)$$

と書き換えられる。このとき断面積は距離に線形の負の相関となる。ただし今回の距離依存性は誤差の範囲内の評価であるため、再実験によって誤差の小さなデータを取得し、改めて距離依存性を評価することが望まれる。

4.6. 検出器の応用

検出器を用いた実験、特に大強度トリチウム線源を用いた実験および、その電気化学的によって、本検出器が ^3H の量に対して感度を持つことが明らかになった。この特性を生かし、将来的には kg 級の ^3H を取り扱う核融合炉での、 ^3H の非破壊モニタリングに利用できる可能性がある。本検出器は外部電源からの電力供給を必要としない上に、非破壊でトリチウムの存在を確認することができるため、設置が容易な点で優れていると考えられる。実際にセンサーとして使用する場合は、17 g のトリチウムに対して 8.6 m 離れた位置でバックグラウンドの 2 倍の反応率と推定されていたため(表 4-4 参照)、これを基準にすると質量生成場の距離に負の係数で比例するため、1.7 kg のトリチウムを間接的にモニターする場合は 860 m 離れた位置付近に検出器を設置すれば明確にトリチウムの存在を検知できることになる。このトリチウムが半分の 0.85 kg に減少した場合は反応率が $1/\sqrt{2}$ 倍になることが想定されるため、電気化学的解析によって測定開始から 20 日目の出力電流が 115 nA から 100 nA 程度に減少することが推定される。このように、kg 級のトリチウムをモニターする場合はトリチウムから約 1 km 離れた場所からでも検出器出力電流の 10 % 以上の変化として観測することが可能になると期待される。

また、弱い相互作用を利用したボソン化した電子による電気化学反応によって、通常では起こりえないような酸化還元反応を起こしている点に注目して、例えばタンパク質の重合などの生化学反応機構の解明にも貢献できる点が挙げられる。これまで未知であった酵素の働きや、人工的に起こすことのできなかつた生化学反応の促進を行うことができれば、自然科学の飛躍的な発展の可能性も期待される。

第5章 結論

ニュートリノなどに作用する弱い相互作用による2体間の散乱現象は、電磁相互作用と統一した電弱理論で記述される。電弱理論では、極めて小さな相互作用断面積を説明するために、相互作用を媒介する重い質量のボソンの存在を規定している。この重いボソンを介した2体間の相互作用ではニュートリノの内部構造を想定していないが、ニュートリノに内部粒子が存在するならば、2体間の散乱現象とは異なる反応チャンネルが開いている可能性がある。

先行研究では、生物由来物質を利用した電気化学的起電力生成装置の出力信号測定実験が行われた。実験は重水減速新型転換炉(ATR)炉心から18mの位置および、九州大学実験室(環境中ニュートリノ場)の2か所で行われ、原子炉傍の検出器出力信号が環境中ニュートリノ場のものよりも明らかに増大する結果が得られていた。本研究では新たに加圧水型原子炉(PWR)や、低エネルギーベータ崩壊核種である大強度トリチウム線源周辺で検出器出力信号測定実験を行い、過去の実験結果の妥当性を検証するとともに検出器出力信号の特性を調べることを目的とした。

第1章では、標準理論における弱い相互作用の取り扱いについて説明した後、先行研究における実験結果を踏まえて、電弱理論を多体系の内部相互作用へ拡張して適用する可能性について述べた。電弱理論は2体間の散乱現象を取り扱うため2体間に生成する一体場を対象とするが、ニュートリノが内部粒子を持ち多体系を構成しているならば、内部相互作用を介した反応が出現する可能性があることを示した。

第2章では、本研究グループで使用している検出器の構造および検出器の特性を詳細に調べるために新たに行った実験について説明した。検出器では、酸化電極の周りに配置されている生物由来物質生糸が出力信号生成に重要な役割を果たしており、出力信号は原子炉等に由来の弱い相互作用場から影響を受けて増大することが示唆された。また生糸のセリシン除去試料を用いた実験によって、検出器出力信号生成には生糸の中のセリシンというタンパク質が大きく寄与していることを明らかにした。このことから、特にセリシンがその周辺に質量生成場を生成し、検出器出力信号生成に関わっていることが推定された。またイオンクロマトグラフィによる定量分析によって、セリシンからは様々な不純物イオンが溶出するが、それらのイオン溶出は生糸を水に浸けてから約2日で終了し、酸化反応による検出器出力信号の初期ピークを作るが、その後は信号生成に寄与しないことも明らかになった。過去の実験結果の再確認の意図も含めて行った溶存酸素濃度測定実験では、検出器内の酸化電極側では酸素生成反応が、還元電極側では酸素消費反応が起こっており、酸素はその濃度勾配に沿って拡散していることが確かめられた。

第3章では、検出器出力信号の増大効果を調べるために新たにPWRおよび大強度トリチウム線源周辺で行った実験について説明した。PWR炉心から26mの位置に複数の検出器を設置して行った実験によって、過去のATRでの実験結果と矛盾しないデータが

得られ、ATR、PWRなどの原子炉の近傍に検出器を設置すると出力信号が増大することが誤差付きで証明された。また先行研究における MVP-BURN を用いた燃焼計算を通して得られたニュートリノ束のエネルギースペクトル解析から、検出器出力信号は特に低エネルギーベータ崩壊核種によって増大することが示唆された。この結果を受けて行ったトリチウム線源から距離8.6 mの位置での実験においても出力信号増大効果が見られ、原子炉実験と矛盾しない結果が得られ、さらにトリチウム由来の反ニュートリノ束では検出器出力信号生成を説明できないことから、検出器出力信号増大現象は低エネルギーベータ崩壊核種が生成する質量生成場の影響下で環境ニュートリノの検出効率が上昇したことによって起こることが推定された。またトリチウムから距離2.4 m、8.6 m、および16.8 mの位置における同時測定によって、トリチウム線源から検出器までの距離にほぼ線形的な負の相関で出力信号増大効果が弱まることが明らかになった。

第4章では、想定する検出器の出力信号生成プロセスについて述べたのち、出力信号時間変化の電気化学的解析について説明した。本研究グループでは検出器出力信号の時間発展を解析するための電気化学的解析モデルを提案しているが、通常電気化学反応に加えて、ボソン化した電子の介在を仮定すると、過去のATRでの実験に加え、今回のPWR、トリチウム線源を用いた実験における出力信号の時間発展を矛盾なく説明できることが明らかになった。検出器は原子炉やトリチウムからの質量生成場 B_H の影響を受けて出力信号が増大していることが示唆された。また、この解析から原子炉内のプルトニウム241等の低エネルギーベータ崩壊核種に比べて、トリチウムの方が検出器出力信号生成に対して約200倍の影響力を持っていることが明らかになった。トリチウムは自然界のベータ崩壊核種の中で核子数が少ない上に陽子数に対する中性子数が最も多い。そのため、その外側中性子は核力の効果が弱く反ニュートリノの性質を残しており、プルトニウム241等の他のベータ崩壊核種に比べて相対的に強い質量生成場を生成する性質があると推定される。また、第2章のセリシン除去実験と合わせて考えると、セリシン内のカリウム40もトリチウムやプルトニウム241と同様に質量生成場を生成している可能性が示唆される。カリウム40の場合はトリチウム等と異なってベータマイナス崩壊に加えてベータプラス崩壊も可能であるため、核内中性子と陽子のエネルギー状態が比較的近いことが、質量生成場の生成に関わっていると考えられる。

本研究によって、検出器出力信号がトリチウムの原子核数に感度を持つことが明らかになったため、将来的には、kg級の ^3H を使用する核融合炉燃料の非破壊モニタリングに使用できる可能性がある。外部からの電源供給を必要としないため、設置が容易なセンサーとしての活用が期待される。また、弱い相互作用を利用した電気化学反応によって通常では起こりえないような酸化還元反応を起こしている点に注目して、例えばタンパク質の重合などの生化学反応機構の解明または促進にも貢献できる点が挙げられる。これまで未知であった酵素の働きや、人工的に起こすことのできなかった生化学反応の促進を行うことができれば、自然科学の飛躍的な発展の可能性も期待される。

謝辞

本研究を遂行するに当たり、多大なご指導・ご助言を頂きました、石橋健二教授(現在は特任教授)に深く感謝申し上げます。石橋教授率いる本研究グループの研究は非常に先進的であり、科学研究の魅力を存分に体感することができました。真理の探究に、より一層の浪漫を見出しました。

本研究および様々な研究活動について、多くのご助言を頂きました、前畑京介准教授に深く感謝申し上げます。私が本研究グループに所属するきっかけを与えて下さったのも、前畑准教授でした。

研究活動において、ご助言を頂きました、伊豫本直子准教授に深く感謝申し上げます。

本研究に関する実験を行うに当たり、多角的なご指摘とご協力を頂きました、執行信寛助教に深く感謝申し上げます。

本研究に関する実験を行うにあたり、検出器の設置場所確保から管理、実験操作協力に至るまでご協力いただきました、日本原子力研究開発機構、トリチウムプロセス研究棟の職員の皆様に深く感謝申し上げます。特に高田弘氏、原田正英氏、倉田理江氏、山田正行氏には大変お世話になりました。皆様のご協力のお蔭で、極めて新規性の高い実験結果を得ることができました。

本研究に関する実験を行うに当たり、検出器の設置場所確保から管理、実験操作協力に至るまでご協力いただきました、RENO 実験グループの皆様および、Hanbit 原子力発電所の職員の皆様に深く感謝申し上げます。特に Gwang Min Sun 氏、Bo-Young Han 氏には大変お世話になりました。1年以上もの長期にわたって、良質な実験データ取得のために協力し続けてくださいました。

本研究に関する解析を行うに当たり、原子炉燃焼計算の手法を教えていただくところから実際の計算までご協力を頂きました、エネルギー量子工学専攻藤本研究室の皆様に深く感謝申し上げます。

本研究に関する実験を行うに当たり、ご協力を頂きました、エネルギー量子工学専攻出光研究室の皆様に深く感謝申し上げます。

本研究を遂行するに当たり、実験器具の扱い方から論文の執筆に至るまで、多くのご助言及びご指摘を下された中村昌平氏に深く感謝申し上げます。

本研究を遂行するに当たり、研究室生活を支えてくださいました、エネルギー量子工学専攻前畑研究室の皆様に深く感謝いたします。

興味深い物理学の授業を通して私を自然科学の世界に誘って下さいました榎山誠司氏には、格別に深い感謝の気持ちを抱いております。榎山氏に出会わなければ、私が現在のように科学研究に携わることもなかったかもしれません。

最後になりましたが、9年間にわたる学部・修士課程・博士後期課程の学生生活を精神的にも経済的にも支えて頂きました両親、そして温かく見守って下さった家族の皆様および脇山美智氏に心から御礼申し上げます。ありがとうございました。

参考文献

- [1] F. Halzen, A.D. Martin, "Quarks and Leptons", (New York, Wiley, 1984).
- [2] I. J. R. Aitchison, A.J.G. Hey, "Gauge Theories in Particle Physics", (Bristol, Adam Hilger, 2002).
- [3] J. D. Bjorken, S. D. Drell: "Relativistic Quantum Fields", (McGraw-Hill, 1965).
- [4] J. A. Formaggio and G. P. Zeller, Rev. Mod. Phys., **84**, 1307 (2013).
- [5] S. L. Glashow, Nucl. Phys., **22**, 579 (1961).
- [6] S. Weinberg, Phys. Rev. Lett., **19**, 1264 (1967).
- [7] A. Salam, "Weak and Electromagnetic Interactions," 8th Nobel Symp., Lerum, Sweden, May 19–25, (1968).
- [8] C. Quigg, "Gauge Theories of the Strong, Weak and Electromagnetic Interactions", (London, Amsterdam, Benjamin, 1983).
- [9] K. Hagiwara et al. (Particle Data Group), Phys. Rev., D **66**, 010001 (2002).
- [10] Joseph A. Formaggio, G. P. Zeller., Rev. Mod. Phys., **84**, 1307 (2013) .
- [11] Yusuke Koshio, "Study of Solar Neutrinos at Super-Kamiokande", University of Tokyo PhD Thesis, 29-34 (1998).
- [12] Y. Fukuda, et al., Phys. Rev. Lett., **81**, 1562 (1998).
- [13] J. C. Street, E. C. Stevenson, Phys. Rev., **52**, 1003 (1937).
- [14] Danby G, Caillard J M, Goulianous K, et al., Phys. Rev. Lett., **9**, 36 (1962).
- [15] M. L. Perl et al., Phys. Rev. Lett., **35**, 1489 (1975).
- [16] B. Pontecorvo, Zh. Eksp. Teor. Fiz., **53**, 1717 (1967).
- [17] J. W. F. Valle, J. Phys. Conf. Ser., **53**, 473 (2006).
- [18] Marco Drewes, Int. Jour. Mod. Phys., E. **22**, 1330019 (2013).
- [19] V. M. Lobashev, V. N. Aseev, A. I. Beselev, et al., Phys. Lett., **B460**, 227 (1999).
- [20] A. Gando, et al., Phys. Rev. D, **83**, 052002 (2011).
- [21] Y. Abe, et al., Phys. Rev. D, **86**, 052008 (2012).
- [22] C. Zhang, "Recent results from Daya Bay," XXVI International Conference on Neutrino Physics and Astrophysics, Boston, USA, June 2–7, (2014).
- [23] J.H. Choi, et al., Phys. Rev. Lett. **116**, 211801 (2016).
- [24] J. H. Jenkins, et al., Astropart. Phys., **32**, 42 (2009).
- [25] W. Liu, et al., J. Nucl. Sci. Technol., **41**, Suppl. 4, 487 (2004).
- [26] M. A. Halim, et al., Mem. Fac. Eng., Kyushu Univ., **66**, 217 (2013).
- [27] E. S. Riyana, et al., Jour. Rad. Prot. Res., **41**, 373 (2016).
- [28] N. Nakanishi: Prog. Theor. Phys., **38**, 881 (1967).
- [29] B. Lautrup: K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. **35**, 11 (1967).
- [30] Liu Wei, "Study on Detection of Environmental Neutrinos by Means of Miniaturized

- Apparatus Based on Electrochemical Reaction”, Kyushu University PhD Thesis, 54-94 (2004).
- [31] Yong-woo Lee: “Silk reeling and testing manual”, (FAO Agricultural Services Bulletin No.136, 1999).
- [32] Y. Takasu, H. Yamada, K. Tsubouch, *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, **66**, 2715 (2002).
- [33] T. Yamamoto, T. Miyajima, K. Mase, T. Iizuka, *Bio Rev.*, **20**, 13 (2003).
- [34] 川崎 建次郎, 野田 博明, 木内 信, "昆虫テクノロジー: 産業利用への可能性", 106-107 (シーエムシー出版, 2005).
- [35] 皆川 基, "絹の科学" (関西衣生活研究会, 1981).
- [36] 高原社 HP: <http://www.kougensha.com/project/sericin/index.html> (2017年12月14日アクセス)
- [37] Peter Atkins, Julio de Paula, 千原 秀昭, 中村 亘男 訳, "アトキンス物理化学(上) 第8版", (東京化学同人, 1979).
- [38] A. J. Bard and L. R. Faulker, "Electrochemical methods, Fundamentals and Applications 2nd Ed.", (John Wiley & Sons, 2001).
- [39] N. Aida, et al., *Mem. Fac. Eng., Kyushu Univ.*, **73**, 27 (2013).
- [40] T. S. Light., et al., *Electrochem. Solid-State Lett.* **8**, E16-E19 (2008).
- [41] C. E. ST-Denis and C. J. D. Fell, *The Can. J. Chem. Eng.*, **49**, 885 (1971).
- [42] 藤井 孝藏, "流体力学の数値計算法", (東京大学出版会, 1994年).
- [43] F. Simkovic, et al., *Phys. Lev. C* **77**, 055502 (2008).
- [44] G. W. Carter and E. M. Henley, *Int. J. Mod. Phys. E* **14**, 1017 (2005).