

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 15 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13480

研究課題名(和文) 新規の高屈折率媒体を用いた暗黒物質検出器の開発・研究

研究課題名(英文) Research and development of dark matter detector using new high refractive index medium

研究代表者

岸本 康宏 (Kishimoto, Yasuhiro)

東京大学・宇宙線研究所・准教授

研究者番号：30374911

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：大体積の標的が要求される暗黒物質探索実験に用いる目的で、複数の結晶シンチレータをあたかも1つの系として取り扱う事が可能となる系の構築を目指して研究を行った。本研究のポイントは、高屈折率の薄膜や媒体を用いて、シンチレーション光の反射を抑制する点である。薄膜形成では1.9～2.3の高屈折率薄膜を形成することに成功した。屈折率は原料組成と焼成温度で制御可能である。媒体を用いた方法では屈折率1.76の透明樹脂で結晶シンチレータを封じ、潮解性のあるシンチレータも長期に亘って安定して使用できることが分かった。一方で、暗黒物質探索に実用化するには幾つかの課題があることも判明し、今後の課題である。

研究成果の概要(英文)：We aimed at constructing a system capable of handling multiple crystal scintillators as a single system for the purpose of using for searching dark matter experiment which requiring a large volume target. The point of this research is to suppress the reflection of scintillation light by using a thin film or medium with a high refractive index. In the thin film formation, it succeeded to form a high refractive index thin film of 1.9 to 2.3. The refractive index can be controlled by the material composition and firing temperature. In the method using the medium, it was found that the crystalline scintillator is sealed with a transparent resin with a refractive index of 1.76. This method makes deliquescent scintillators be stably used over a long period. On the other hand, it turned out that there are some issues to put into practical use for dark matter searches, and it is a future task.

研究分野：天体素粒子物理学

キーワード：暗黒物質 結晶シンチレータ 高屈折率媒体

## 1. 研究開始当初の背景

宇宙は、我々の知らない物質、暗黒物質で満ちている。その量は、我々の知る通常の物質の約5倍にもおよび、その正体を明らかにすることは、現代の素粒子、宇宙物理学における最大の課題である。

暗黒物質は、相互作用が非常に弱くしか反応しないため、大量の標的物質が必要となる。標的物質としては、例えば結晶シンチレータが挙げられる。殊に、タリウム添加ヨウ化ナトリウム結晶を用いた先行研究では、暗黒物質の特徴と一致した信号が報告されており、その一方で、別種の標的を用いた研究では、そのような暗黒物質を否定する結果となっていた。このような混沌とした状況下、これまでになく大量の結晶シンチレータを用いて、先行研究を追試することへの要求が高まっていた。

しかし、大体積の結晶シンチレータを生成することは容易でなく、結果的に比較的小さな体積の結晶を大量に用いる実験しか遂行することが出来ず、この点が、先行研究を詳しく追試することを困難なものとしていた。

## 2. 研究の目的

本研究では、結晶シンチレータと同一の高い屈折率を持つ物体を使用して、多数の結晶シンチレータ小片があたかも1つの系としてみなせるような実験系の構築の可能性を探り、大体積の標的物質による暗黒物質の探索の実現性について研究を行った。

## 3. 研究の方法

研究では、結晶シンチレータと同一の屈折率をもつ薄膜、媒体を用いることで、結晶シンチレータ表面での屈折率による反射(フレネル反射)を抑制することにより、多数の結晶を用いた系であっても、全体としては1つのシンチレータとみなせるような系の構築を目指した。

### 1) 薄膜による方法:

結晶シンチレータ上に、高屈折率の薄膜を製膜し、その薄膜を多層膜、あるいはモスアイ構造等に制御することで、結晶による反射を抑制する方法である。この手法では、高い屈折率を持った薄膜を製膜できるか、屈折率のコントロールが可能か、等が課題となる。

### 2) 媒体による方法:

結晶シンチレータは密度が高く、これと同等な屈折率を持つ物質は限られている。本研究の最終目的は暗黒物質探索であり、巨大な体積を持った系を長時間運転することが必要である。このような要求を満足した媒体を見つけ、テストすることが必要である。

本研究では、上記の2つの点について、実験的に調べた。

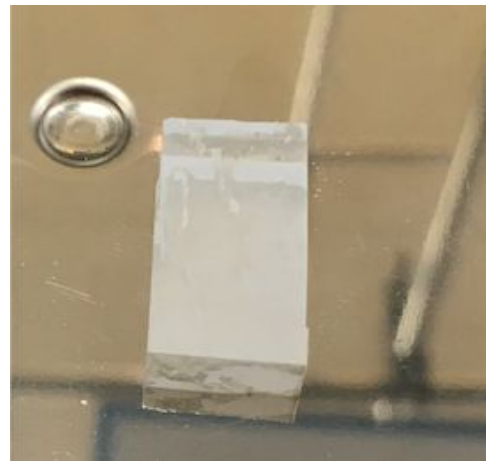
## 4. 研究成果

本研究の成果について、上記の2つについて各々述べる。

### 1) 薄膜による方法:

研究は、松本ファインケミカル殿と協力して行われた。製膜では、屈折率が1.9~2.3と非常に高い屈折率を持った膜を石英基板上に生成することに成功した。膜自身は化学的にも安定で、また製膜方法は、調剤した薬液に結晶シンチレータを浸して表面に塗布し、その後、恒温槽で焼成する、という非常に簡便な方法であり、大型化、大量生産などが可能と考えられた。膜の屈折率は、化合物の割合と焼成温度の変更によって変更することが可能である。生成の簡便さ、調整の容易さの点などから、研究の端緒として非常に優れた成果が得られた。

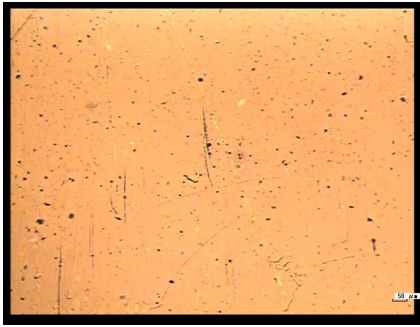
この手法を、暗黒物質探索で注目されるヨウ化ナトリウム結晶シンチレータに対して適用した。この結果、いくつかの問題点が判明した。それは、結晶表面上に、非常に細かい白斑が生じる点、また、結晶の光学面によって膜の出来が異なる点である。下の写真がその様子を示している。



白斑が生じると、そこでシンチレーション光が散乱し問題となり、また面によって膜厚等が異なると、系の一様性が損なわれる結果となるため、この2点の解決が計られた。

特に潮解性との関連が疑われたため、潮解性の少ないヨウ化セシウム結晶を用い、さらに表面を6面研磨したシンチレータを用いて研究を継続した。その結果、ヨウ化セシウム結晶では白斑が見られなかった。また、6面を鏡面研磨した場合には、6面全てが一樣に製膜された。下はヨウ化セシウム上の薄膜を施した後の結晶と、その表面の顕微鏡写真である。細かい傷は見ら

れるものの一様に製膜されていることが分かる。



従って、白斑については、潮解性との関連性がより疑われる結果となり、また一様な塗布には面の状態を揃えることが必要と分かった。面による依存性については、刷毛塗により、面毎に液を変えろという方法も1つの解決策と考えられる。

ヨウ化セシウムの結果を受け、ヨウ化ナトリウム結晶にきれいな製膜を行うことと目標に、溶媒の変更、面研磨などの手法で解決を図ったが、解決までには至らなかった。

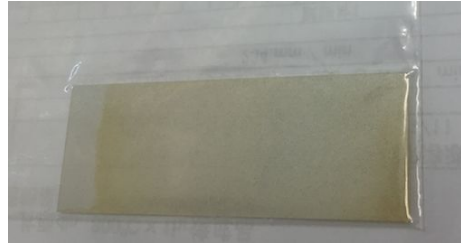
ところで、表面に製膜した結晶では、短期間には潮解性が見られず、製膜により、結晶の取扱い上、簡便になったと考えられたが、この結晶を6か月程度、空気中に曝すと、結晶の表面が白く濁っていることが判明した。即ち、ゆっくりと潮解することが判明した。本研究で得られた  $50\mu\text{m}$  程度の膜では、潮解性を完全には阻害することが出来ず、耐潮解性の観点からはもっと厚い膜が必要であると分かった。

ここで、研究の方向性を変え、潮解性がない結晶で、非常に屈折率が大きなシンチレータとして、タングステン酸カドミウム結晶に、この薄膜を適用した。この結晶は、ニュートリノを伴わない二重ベータ崩壊の核種(カドミウム)を含んでおり、注目の結晶である。その一方で、屈折率が非常に大きく(2.4)、研究を開始した当初ではこのような屈折率の膜を想定していなかった。しかし、本研究では、このよう

な高屈折率も実現できると判明したため、当初の想定を超えて、研究を遂行した。

この結晶の屈折率(2.4)に合わせるためには、高温での焼成が必要であり、結果的には、これが原因で結晶品質に劣化が生じることが判明した。

次の写真は、変色したタングステン酸カドミウム結晶である。



まとめると、薄膜生成法のアプローチでは、屈折率2.3にも達する薄膜に成功した。この手法は、潮解性のない結晶シンチレータには適用可能と考えられる。暗黒物質探索の観点からは、ヨウ化ナトリウム結晶が特に注目されるが、この結晶に適用するためには更なる研究が必要である。ヨウ化セシウムを用いた実験ならば、可能性が非常に高いと言える。

## 2) 媒体による方法:

屈折率が高く、透明で安定な溶媒を探した結果、屈折率 1.76 の樹脂を見つけた。屈折率 1.76 は結晶シンチレータと比較して必ずしも大きいとは言えないものの、入手の容易さ、取扱い等の観点から、実用的と判断された。特に、フレネル反射は屈折率の差の2乗に比例するため、反射の効果は著しく減じることが出来る。

そこで、この樹脂について、三菱ガス化学殿と協力してヨウ化セシウム結晶について研究を行った。ヨウ化セシウム結晶を選択した理由は、ヨウ化ナトリウム結晶に比して、屈折率が小さいこと、潮解性が少なく取扱いも容易と考えたからである。

ヨウ化セシウム結晶をこの樹脂にポッティングした結果、結晶と樹脂の間に亀裂が生じることが分かった(次頁の写真)。

この亀裂は、樹脂が固化する際の熱によるひずみが原因と考えられた。結晶は熱伝導が非常に良く、一方で、樹脂は熱伝導率が低く、さらに反応の進行具合が場所によって異なる。そのため、結晶との境界でひずみが蓄積しやすいと考えられる。従って、結晶のサイズの最適化を行うことで、この問題を回避できる可能性がある。



一方で、この写真から分かるように、結晶と樹脂の境界が明確に判別でき、ヨウ化セシウムにおいても、屈折率の一致が完全でないことが分かる。亀裂の問題サイズの最適化との兼ね合いが課題となる。  
この手法の美点としては、樹脂によって結晶が完全に保護されるため、潮解性のある結晶でも容易に取扱うことが可能であることが確認された。  
暗黒物質探索の観点からは、屈折率の高い樹脂の開発された際には、最も実用的な系の構築が可能と考えられる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

岸本 康宏 (KISHIMOTO YASUHIRO)  
東京大学・宇宙線研究所・准教授  
研究者番号：30374911

##### (2) 研究分担者

なし( )  
研究者番号：

##### (3) 連携研究者

なし( )  
研究者番号：

##### (4) 研究協力者