

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2006～2008

課題番号：18340062

研究課題名 (和文) 次世代超稀現象探索実験用シンチレータの研究

研究課題名 (英文) Development of next generation scintillators to study of rare event

研究代表者

小川 泉 (OGAWA IZUMI)

大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：20294142

研究成果の概要：二重ベータ崩壊・暗黒物質などの超稀現象探索実験を行うために必要な高感度放射線検出用シンチレータ（主としてフッ化カルシウム結晶）の開発研究を行った。結晶中に含まれる放射性不純物の低減を図るとともに、結晶の組成や物理パラメータを操作することによる高感度化（バックグラウンド低減）の可能性を探った。これらの研究の結果、不純物濃度の低減と、冷却による粒子弁別の効率化を確認し、高感度化が可能であることを示した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	6,600,000	0	6,600,000
2007年度	5,100,000	1,530,000	6,630,000
2008年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
年度			
総計	14,900,000	2,490,000	17,390,000

研究分野：原子核・素粒子実験

科研費の分科・細目：物理学・素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：二重ベータ崩壊、暗黒物質、シンチレータ、フッ化カルシウム

1. 研究開始当初の背景

二重ベータ ($\beta\beta$) 崩壊、特にニュートリノ放出を伴わない $0\nu\beta\beta$ 崩壊は、ニュートリノ質量の起源が Dirac 型であるか、Majorana 型であるかを検証可能なほぼ唯一の研究であり、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊が観測されて Majorana 型であることが証明されれば宇宙の物質・反物質の非対称性を解くレプトジェネシス模型の妥当性を示す鍵となりうる。

また宇宙暗黒物質(DM;特に WIMPs)探索実験は我々のグループを含め世界各地で行われているが、ここ数年、数十 kg の NaI シンチレータからの信号の年周変化解析により

WIMPs の存在を示唆する結果が報告される一方、極低温の半導体熱量検出器や希ガスを利用した二相式の検出器によりその存在を否定する結果も示され、議論を呼んでいる。

我々のグループでは上記の研究を行うため、ELEGANT VI 及びそのコンセプトを継承し大型化により高感度化を図った CANDLES 計画を進めてきた。現在、主として ^{48}Ca の $\beta\beta$ 崩壊研究を目的として CaF_2 シンチレータを主検出器とする、有効マヨラナニュートリノ質量 ($\langle m_{\nu} \rangle$) にして 0.5 eV 程度の感度を持つ CANDLES III 検出器 (図 1) の地下実験室への設置を進めるとともに、更な

る高感度 ($<m_{\nu}> \sim 0.1$ eV) 検出器の基礎研究を進めている。また暗黒物質探索実験への適用の可能性も探っている。これら高感度測定を実現するためには、標的原子核の量を増やす(装置の大型化)と同時に、バックグラウンド(BG)の低減が重要である。

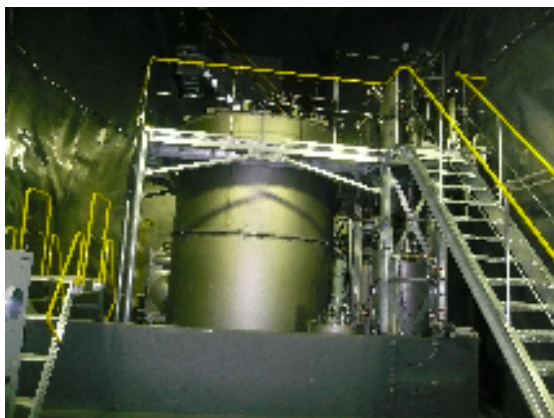


図 1: 神岡地下実験室に設置された CANDLE III 検出器

2. 研究の目的

本研究課題ではこの CANDLE 計画における BG 低減研究として、 CaF_2 シンチレータの内部放射性不純物低減と、シンチレーション特性の制御による BG の低減を進め、最終的に次世代検出器計画の実現性を明らかにする。

大型化に際してはそのサイズに応じてエネルギー分解能の向上と BG の低減を達成しなければならない。CANDLE 計画ではこれまでのところ、検出器のデザインなどを工夫することにより、これらを達成している。本研究計画では、主検出器たる CaF_2 シンチレータの内部放射性不純物の低減をさらに進めていく。

この手法は確実な BG 低減が見込まれる一方、コストや結晶製造にかかる時間の増大も予想される。そこで本研究計画では結晶の組成や物理パラメータの制御による結晶特性の制御の研究も同時に進め、これらの研究を相補的に行うことにより、最も効果的な BG 低減の手法を探っていく。結晶組成の制御の一つの例としては、結晶にドーパされる活性化剤の選択がある。一方、物理パラメータの一例としては結晶の温度がある。これら活性化剤の種類・濃度や、結晶の温度等に対するシンチレータとしての特性の変化を系統的に調べることにより、粒子弁別能を利用した BG の低減や、発光量の増大によるエネルギー分解能の向上などに役立てることが出来る。これらの成果はまた DM 探索実験においても、BG の低減やエネルギー閾値の引き下げ、散乱原子核の消光係数の理解などを通じて感度の向上に寄与できる。

3. 研究の方法

本研究では CANDLE 計画における BG 低減を目指して、 CaF_2 シンチレーション結晶に対する以下の研究を進める。

- (1) 結晶製造業者・結晶原料製造業者との共同研究を進め、 CaF_2 結晶の製造手法を更に改良し、結晶中の放射性不純物の低減を図る。
- (2) 濃度を変化させた数種の活性化剤(activator)を添加した CaF_2 結晶を製作し、その特性(発光量・透過率・消光係数・粒子弁別能など)を調べ、その関係性を明らかにすることにより、CANDLE 計画に適し、且つバックグラウンド低減可能な結晶の製作可能性を探る。
- (3) 結晶の物理パラメータを変化させ、(2)と同様な結晶の特性を測定し、その関係性を明らかにし、BG 低減に最適なパラメータを求める。

4. 研究成果

(1) 結晶内放射性不純物の低減。

CaF_2 結晶に含まれる放射性不純物(特に U, Th) の低減を図るべくいくつかの基礎研究を行った。これまでの研究で結晶原料である CaF_2 パウダー、及びさらにその原料であるカルシウム塩の放射性不純物濃度の低減が重要であることがわかっている。そこで、比較的安価かつ大量に精製可能であると考えられるいくつかの手法を用いてパウダーを処理し、放射性不純物濃度を測定した。この測定において ICP-MS・半導体検出器・溶融品を用いたシンチレーション検出器の手法を利用することにより従来に比してより効率的な測定手法を確立した。

上記の手法を用いて生成した原料を利用して結晶を作成した。その際、結晶成長過程による影響も確認するため、いくつか異なる結晶成長手法を用いた。得られた結晶の放射性不純物濃度を測定するため、地下実験室での遅延同時計数法を用いて測定を行った。この結果、結晶内の放射性不純物濃度の低減は着実に進んでいるが、一方で現時点での不純物濃度では原料の違いによる影響がまだ主であることが分かった。

これを受けて、結晶原料製造業者との共同研究を進め、原料の処理、特に溶融処理に着目して、その温度や継続時間等のパラメータを最適化することにより、不純物濃度の低減を進めた。この開発研究により、特に二重ベータ崩壊実験にて最大の BG 源となる Th 系列の不純物に関して安定した低減効果(Th の放射性不純物濃度として 10^{-6} Bq/kg のオーダー)が得られることを確認した。また将来の大量生産を念頭に低コストで可能な結晶成長手法の開発も行った。

(2) 活性化剤を添加したCaF₂結晶の発光量測定

一般的にシンチレータの消光係数などの特性はドーピングする活性化剤の種類及び濃度によって変化することがわかっている。BGを低減するうえで最適な種類・濃度を決定するが、前提として発光量・透過率などは現在のCaF₂結晶と同程度であることが要求される。シンチレーション結晶として広く使用されているEu（透過率が低いことが分かっている）と同様のランタノイドを中心に数種類の活性化剤を、濃度を変えて添加したCaF₂結晶を製作した。それぞれの透過率や発光波長スペクトルを測定するとともに、CANDLES Iプロトタイプ検出器と標準線源を用いて発光量の測定も行った。これらのサンプルではCANDLESで使用中のCaF₂結晶に比べて、透過率は同等の値を得たが、残念ながら発光量はかえって低下してしまった。今後も試作・測定は続けていきたいと考えている。

(3) CaF₂結晶の発光量・粒子弁別能の温度依存性

CaF₂結晶の温度による発光量や時定数の違いに着目して研究を進めた。条件としては比較的容易に実現可能な液体窒素温度を念頭に置き、低温での測定が可能な装置の製作を行った。これらの装置に単光子計測回路を適用して、検出器の温度を変えてγ線・原子核反跳それぞれの発光信号の測定（特に発光量と信号の減衰時定数）を行った。その結果、210 Kでは室温に比してそれぞれの値が約2倍になった。下図は、信号弁別能の目安として時定数の違い・ T を時定数の揺らぎ・ σ で割ったものを縦軸に、電子換算エネルギーを横軸にプロットしている。これを見ると信号弁別能が室温に比べて2～3倍程度になっていることがわかる。この情報を粒子弁別に利用することにより、特に暗黒物質探索実験においてBGが少ない測定を行うことが可能であることを示した。

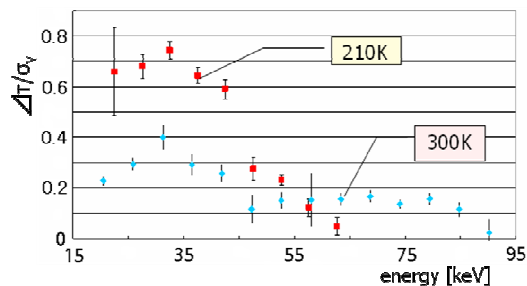


図 2 : CaF₂ シンチレータの低エネルギー領域における粒子弁別能の温度依存性

(4) CaF₂以外の二重ベータ崩壊研究用シンチレーション結晶の製作

CaF₂以外の、二重ベータ崩壊核 (¹⁵⁰Nd, ⁹⁶Zr)

を含む結晶シンチレータ製造の可能性についても探り、発光量・発光波長スペクトルなどの測定を行った。残念ながら今回の試作ではシンチレータとして使用可能なものは作れなかった。今後も試作は続けていきたいと考えている。

以上により、結晶内の放射性不純物濃度の低減を着実に進めることに成功し、更にいくつかの相補的なBG低減手法を試してみた結果、結晶の冷却により、さらなるBG低減が可能であることを示した。

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 12 件)

1. S. Yoshida, T. Kishimoto, I. Ogawa, 他 6 名, "Ultra-violet wavelength shift for undoped CaF₂ scintillation detector by two phase of liquid scintillator system in CANDLES", Nucl. Instr. Meth. A **601** (2009) 282、査読有
2. S. Umehara, T. Kishimoto, I. Ogawa, 他 13 名, "Neutrino-less double-β-decay of ⁴⁸Ca studied by CaF₂(Eu) scintillators", Phys. Rev. C **78** (2008) 058501、査読有
3. R. Hazama, I. Ogawa, T. Kishimoto (23 番目), 他 20 名, "Search for Spin-dependent WIMPs with CaF₂ Detector", Proc. 6th International Heidelberg Conference on Dark Matter in Astroparticle and Particle Physics (DARK2007) (2008) 113、査読無
4. I. Ogawa, T. Kishimoto (10 番目) 他 8 名, "Dark matter search with CaF₂ scintillator at Osaka", Proc. of the Int. Conf. on Topics in Astroparticle and Underground Physics (TAUP2007) (2007) 042019、査読有
5. Y. Hirano, T. Kishimoto, I. Ogawa, 他 5 名 for the CANDLES Collaboration, "Study of Double Beta Decay of ⁴⁸Ca with CANDLES", Proc. of TAUP2007 (2007) 052053、査読有
6. S. Umehara, T. Kishimoto, I. Ogawa, 他 13 名, "Double beta decay of ⁴⁸Ca studied by CaF₂(Eu) scintillators", Proc. of TAUP2007 (2007) 052058、査読有
7. Y. Tsubota for the CANDLES Collaboration (I. Ogawa, T. Kishimoto et al.), "Study of light guide system for CANDLES", Proc. of TAUP2007 (2007)

- 052060、査読有
8. G. Ito, T. Kishimoto, I. Ogawa, 他 5 名 for the CANDLES Collaboration, "Study of Design for CANDLES Trigger System", Proc. of TAUP2007 (2007) 052061、査読有
 9. I. Ogawa, T. Kishimoto, 他 12 名, "Study of ^{48}Ca double beta decay with CANDLES", Proc. of the International Nuclear Physics Conference (INPC2007) vol. II, (2007) 24、査読無
 10. 岸本忠史・小川泉・梅原さおり・平野祥之、「2重ベータ崩壊とCANDLES実験」原子核研究、**51** (2007) 36、査読有
 11. R. Hazama, Y. Tatewaki, T. Kishimoto, K. Matsuoka, Y. Shibahara and M. Tanimizu, "Challenge on ^{48}Ca enrichment for CANDLES double beta decay experiment", Proc. of 6th Recontres du Vietnam (Challenges in Particle Astrophysics), (2006) 383、査読無
 12. S. Umehara, T. Kishimoto, I. Ogawa, 他 8 名 "CANDLES for double beta decay of ^{48}Ca ", J. Phys. Conf. Ser. **39** (2006) 356、査読有

[学会発表] (計 40 件)

1. 梅原さおり、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(35)」日本物理学会第64回年次大会(東京、2009年3月)
2. 保田賢輔、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(36)ー解析によるBG除去ー」日本物理学会第64回年次大会(東京、2009年3月)
3. 和田真理子、「CANDLESによる暗黒物質探索の研究(5)ー低温での CaF_2 結晶による低エネルギー信号のpulse波形と粒子弁別ー」日本物理学会第64回年次大会(東京、2009年3月)
4. I. Ogawa, "Study of ^{48}Ca double beta decay with CANDLES", International Conference on Particles and Nuclei (PANIC08) (Eilat, Israel, 2008年11月)
5. T. Kishimoto, "Study of ^{48}Ca Double Beta Decay", France-Japanese Symp. on New Paradigms in Nuclear Physics (Paris, France, 2008年9月)
6. 伊藤豪、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(33)ーFPGAを用いたCANDLESにおけるトリガーシステムの研究ー」日本物理学会2008秋季大会(山形、2008年9月)
7. 保田賢輔、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(34)ー CaF_2 と液シンの信号の弁別ー」日本物理学会2008秋季大会(山形、2008年9月)
8. 梅原さおり、「 CaF_2 による ^{48}Ca の二重ベータ崩壊の研究」日本物理学会2008秋季大会(山形、2008年9月)
9. 和田真理子、「CANDLESによる暗黒物質探索の研究(4)ー CaF_2 結晶の低エネルギーパルス波形の温度依存性と粒子弁別ー」日本物理学会2008秋季大会(山形、2008年9月)
10. 梅原さおり、「クラウンエーテル樹脂を用いたカルシウム同位体分離;(3)分離係数とHETP」日本原子力学会「2008年秋の大会」(高知、2008年9月)
11. I. Ogawa, "Study of ^{48}Ca Double Beta Decay by CANDLES", Int. Conf. on Neutrino Physics and Astrophysics (Neutrino2008) (Christchurch, New Zealand, 2008年5月)
12. 梅原さおり、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(29)」日本物理学会2007年第63回年次大会(大阪、2008年3月)
13. 伊藤豪、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(30)ーFPGAを用いたCANDLESにおけるトリガーシステムの研究ー」日本物理学会2007年第63回年次大会(大阪、2008年3月)
14. 坪田悠史、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(31)ーライトガイドによる集光の改善2ー」日本物理学会2007年第63回年次大会(大阪、2008年3月)
15. 平野祥之、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(32)ー地上におけるCANDLES IIIの測定ー」日本物理学会2007年第63回年次大会(大阪、2008年3月)
16. 和田真理子、「CANDLESによる暗黒物質探索の研究(3)ー低エネルギー領域での単光子計測ー」日本物理学会2007年第63回年次大会(大阪、2008年3月)
17. 梅原さおり、「クラウンエーテル樹脂を用いたカルシウム同位体分離」第6回同位体科学研究会(名古屋、2008年3月)
18. T. Kishimoto, "Study of ^{48}Ca Double Beta Decay by CANDLES", DUSEL Town Meeting (Washington, USA, 2007年11月)
19. T. Kishimoto, "Double beta-decay at Oto laboratory", The 3rd Japanese-German EFES (JSPS)-DFG/GSI workshop on Nuclear Structure and Astrophysics (Faruenchiessee, Germany, 2007年10月)
20. 小川泉、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(24)ーCANDLES III(地上)の現状報告ー」日本物理学会2007年第62回年次大会(札幌、2007年9月)
21. 平野祥之、「CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(25)ーCANDLES IIIの基本特性

- と地上における測定」日本物理学会 2007 年第 62 回年次大会（札幌、2007 年 9 月）
22. 梅原さおり、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(26) -FADC を用いたデータ収集システム-」日本物理学会 2007 年第 62 回年次大会（札幌、2007 年 9 月）
 23. 伊藤豪、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(27) -FPGA を用いたトリガー回路の研究-」日本物理学会 2007 年第 62 回年次大会（札幌、2007 年 9 月）
 24. 坪田悠史、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(28) -ライトガイドによる集光の改善-」日本物理学会 2007 年第 62 回年次大会（札幌、2007 年 9 月）
 25. T. Kishimoto, "Study of Double Beta Decay with CANDLES", International Workshop on "Towards a New Basic Science: Depth and Synthesis"（大阪 2007 年 9 月）
 26. T. Kishimoto, "Study of ^{48}Ca double beta decay by CANDLES", Int. Workshop on "Double Beta Decay and Neutrinos" (DBD07)（大阪、2007 年 6 月）
 27. S. Umehara, "Purification of scintillating crystal", International Workshop DBD07（大阪、2007 年 6 月）
 28. 小川泉、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(20) -阪大における現状報告と地下への移設へ向けて-」日本物理学会 2007 年春季大会（東京、2007 年 3 月）
 29. 伊藤豪、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(21) -13 インチ PMT に対する地磁気の影響-」日本物理学会 2007 年春季大会（東京、2007 年 3 月）
 30. 梅原さおり、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(22) -CaF₂ 検出器の不純物濃度とその影響-」日本物理学会 2007 年春季大会（東京、2007 年 3 月）
 31. 平野祥之、「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(23) -地上における CANDLES3 の現状とそのバックグラウンドの評価-」日本物理学会 2007 年春季大会（東京、2007 年 3 月）
 32. 坪田悠史、「CANDLES による暗黒物質探索の研究(2) -集光効率の改善とバックグラウンド削減に関するライトガイドの研究-」日本物理学会 2007 年春季大会（東京、2007 年 3 月）
 33. T. Kishimoto, "Neutrino-less Double Beta Decay Experiments -CANDLES-", KEK Annual Theory Meeting on Particle Physics Phenomenology (KEKPH07) (Tsukuba, Japan, March, 2007)
 34. 岸本忠史, "CANDLES for the study of ^{48}Ca double beta decay", "マヨラナ・ニュ

ートリノとその周辺” 研究会（岡山大学、2006 年 12 月）

35. 小川泉, 「 ^{48}Ca の二重ベータ崩壊」東京大学宇宙線研究所平成 18 年度共同利用研究成果発表会（東京大学、2006 年 12 月）
36. T. Kishimoto, "CANDLES for the study of ^{48}Ca double beta decay and low radioactivity CaF₂ crystals", 2nd Topical Workshop in Low Radioactivity Techniques (LRT06) (Aussois, France, October, 2006)
37. 小川泉, 「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(17) -大阪大学における CANDLES III 検出器の現状報告-」日本物理学会 2006 年秋季大会（奈良、2006 年 9 月）
38. 平野祥之, 「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(18) -シミュレーションによる地下実験施設における CANDLES III の特性-」日本物理学会 2006 年秋季大会（奈良、2006 年 9 月）
39. 梅原さおり, 「CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(19) -バックグラウンド量の評価-」日本物理学会 2006 年秋季大会（奈良、2006 年 9 月）
40. I. Ogawa, "CANDLES for the study of ^{48}Ca double beta decay", Neutrino and Dark Matter in Nuclear Physics (NDM06) (Paris, France, September 2006)

〔その他〕

ホームページ

http://wwwkm.phys.sci.osaka-u.ac.jp/info/syoukai/CANDLES_project.htm

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小川 泉 (OGAWA IZUMI)

大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：20294142

(2) 研究分担者

岸本 忠史 (KISHIMOTO TADAFUMI)

大阪大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：90134808