

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2011～2012

課題番号：23684015

研究課題名（和文） 二重ベータ崩壊測定のためのカルシウム 48 同位体濃縮

研究課題名（英文） Isotope Separation of ^{48}Ca for Double Beta Decay Measurement

研究代表者

梅原 さおり（UMEHARA SAORI）

大阪大学・核物理研究センター・特任助教

研究者番号：10379282

研究成果の概要（和文）：

二重ベータ崩壊核であり、二重ベータ崩壊測定に大きな利点を持つカルシウム 48 を、クラウンエーテル樹脂を用いた泳動実験により濃縮した。本研究では、濃縮量を増やすために、32mm カラムを用いた濃縮テストを行った。結果として、システムの大型化の際にも安定した濃縮結果が得られることを確認した。

研究成果の概要（英文）：

Among double beta decay nuclei, ^{48}Ca has an advantage for a double beta decay measurement. We have studied ^{48}Ca enrichment with chemical isotope separation by using crown ether and obtained enriched ^{48}Ca . We have also obtained the stable isotopic effect with the large scale system for ^{48}Ca enrichment.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2011 年度	9,000,000	2,700,000	11,700,000
2012 年度	13,100,000	3,930,000	17,030,000
年度			
年度			
年度			
総計	22,100,000	6,630,000	28,730,000

研究分野：数物系科学

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：同位体濃縮、二重ベータ崩壊、カルシウム 48

1. 研究開始当初の背景

ニュートリノ振動実験の結果から、ニュートリノの種類間に質量差があることが確実に。なった今、ニュートリノの質量の絶対値を観測できるニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊測定は、重要な研究に位置付けられており、国内外でさまざまな二重ベータ崩壊核を用いた実験が行われている。これらの実験で使われる二重ベータ崩壊核の自然同位

体比は、数 10% 以上の高いものを使用している。結果として、有効マヨラナニュートリノ質量にして数百 meV から 1eV 程度の上限值を与えている。

一方、我々は、 CaF_2 検出器を用いた ELEGANT VI および CANDLES システムを用いて、 ^{48}Ca の二重ベータ崩壊の研究を進めてきた。両システムの最大の特徴は、 ^{48}Ca の高い $Q_{\beta\beta}$ 値によって、バックグラウンドイベ

ントのない測定を行うことが可能であることである。先行する ELEGANT VI システムでは、実際にバックグラウンドイベントがない測定を実現し、 ^{48}Ca のニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊に関して世界でもっとも良い感度を実現した。しかし、本システムは、有効マヨラナニュートリノ質量に対しては十分な感度を持たない。それは、 ^{48}Ca 量が少ないためである。

まず我々は、システムの大型化によって ^{48}Ca 量を増やした。これが CANDLES III システムである。このシステムでもって我々は有効マヨラナニュートリノ質量にして 0.5eV の感度を達成し、世界に追いつく結果を出す。さらに続く次世代検出器の感度目標は、ニュートリノが逆順の質量階層構造を持つ場合に予想される有効マヨラナニュートリノ質量 $\sim 30\text{ meV}$ である。他の実験と異なり、低同位体比の二重ベータ崩壊核で測定を進めている CANDLES 計画は、検出器を大型にすることなく濃縮によってのみで、最大 500 倍（有効マヨラナニュートリノ質量にして 20 倍以上）感度をあげることができる。

我々は、有機化合物の一つクラウンエーテルを用い、化学法によって ^{48}Ca の濃縮を行う。このクラウンエーテルは環状の有機化合物で、その環内に金属イオンを吸着するという特徴を持つ。この吸着には同位体効果がある

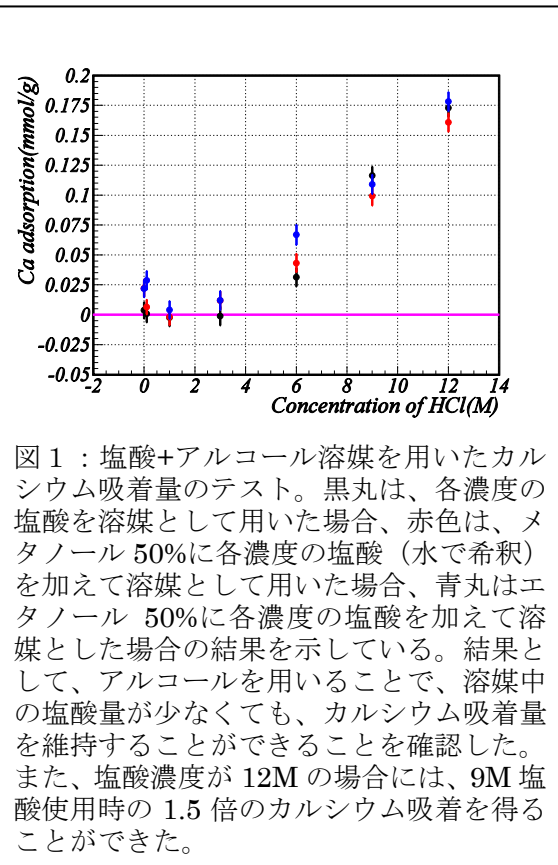


図1：塩酸+アルコール溶媒を用いたカルシウム吸着量のテスト。黒丸は、各濃度の塩酸を溶媒として用いた場合、赤色は、メタノール 50%に各濃度の塩酸（水で希釈）を加えて溶媒として用いた場合、青丸はエタノール 50%に各濃度の塩酸を加えて溶媒とした場合の結果を示している。結果として、アルコールを用いることで、溶媒中の塩酸量が少なくても、カルシウム吸着量を維持することができることを確認した。また、塩酸濃度が 12M の場合には、9M 塩酸使用時の 1.5 倍のカルシウム吸着を得ることができた。

ため同位体分離が可能になる。本研究では、二重ベータ崩壊核である ^{48}Ca を、クラウンエーテル樹脂を用いた泳動実験により同位体濃縮し、大量生産に向けその濃縮効率を評価することを目的とする。必要とされる量 50kg、同位体比 2%の ^{48}Ca をよりコストパフォーマンスよく準備するために、濃縮手順のパラメータ調査を行う。また、実際にクラウンエーテル樹脂の大量生産を開始し、その樹脂性能の評価を行う。

3. 研究の方法

本研究では、泳動実験による濃縮法を確立するために、大量生産に向けた各種検討を進める。主な検討項目は次の通り。

(1) 溶媒の種類によるカルシウム吸着量のテスト：

溶媒として塩酸を用いた場合、カルシウムが吸着されることはわかっている。しかし、濃塩酸を使用する場合、装置の大型化に困難が付きまとう。それは、装置の大型化の際には、配管を金属部品で設計するのが最も容易だが、一方、塩酸は、金属を腐食させてしまうためである。そのため、他の溶媒を用いた時のカルシウム吸着量を調べた。

(2) クラウンエーテル樹脂の合成およびその性能評価：

大量濃縮を行うためにはクラウンエーテル樹脂も大量に必要とする。現在、クラウンエーテル樹脂は、手作業で合成している。すなわち、樹脂の大量生産をした場合に、不均一性が表れる心配がある。そのため、複数ロットで合成した樹脂の性能のばらつきを評価した。

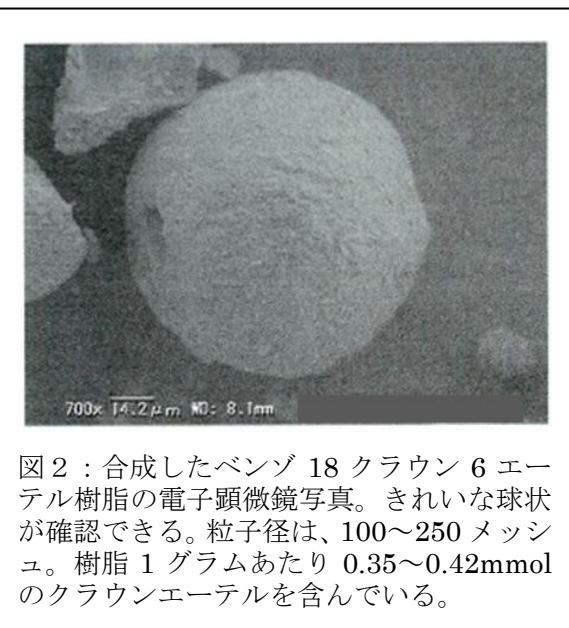


図2：合成したベンゾ 18 クラウン 6 エーテル樹脂の電子顕微鏡写真。きれいな球状が確認できる。粒子径は、100~250 ユ。樹脂 1 グラムあたり 0.35~0.42mmol のクラウンエーテルを含んでいる。

4. 研究成果

(1) 溶媒の種類によるカルシウム吸着量のテスト:

塩酸+アルコールの混合液 21 種類のカルシウム吸着量を調べた結果を、図 1 に示す。これは、アルコールに、各濃度の塩酸を混ぜて溶媒としたときのカルシウム吸着量を示している。結果として、カルシウム吸着量は、用いる塩酸量ではなく、塩酸濃度に依存することが分かった。これは、アルコールを加えることで、酸強度を高める結果となったためだと思われる。この結果により、塩酸濃度が低い溶媒を用いてもカルシウムを吸着させることができることが分かった。

(2) クラウンエーテル樹脂の合成およびその性能評価:

樹脂 10 ロット分の合成を行った。得られた樹脂の電子顕微鏡写真を図 2 に示す。部分的に、樹脂担体が崩れている部分があるが、大部分はきれいな球状を保っていることを確認した。また、崩れている樹脂については、取り分けることで性能評価には使用していない。

この得られた樹脂を用いて濃縮性能の評価を行った。まず、大量の樹脂性能を評価するために、これまでの 16 倍体積 (32mm 直径) の中型カラムを 3 本使用した濃縮装置を構築した (図 3)。これにより、2.4 リットル樹脂の性能評価を一度に行えるようになった。泳動濃縮は、塩酸溶媒に塩化カルシウム溶質を溶かした溶液 10 リットルを用いて行った。溶液の送液速度は、16cc/分で行った。

得られた結果を、図 4 に示す。図 4 の上図は、32mm カラムを用いた泳動実験のカルシウム濃度測定の結果をしめしている。上図では、溶液流入開始から 3520ml の時点でカルシウムが観測され始めていることがわかる。



図 3 : これまでのカラムの 16 倍体積のカラムを設置した様子。本セットアップではガラスカラムを使用した。

得られた吸着カルシウム量は 168mmol (=0.071mmol/cc) であった。これは、単ロット樹脂を用いた際に得られたカルシウム吸着量 0.068mmol/cc とほぼ一致しており、安定した樹脂合成が行えていることを確認できた。また、図 4 下図は、同位体測定の結果を示している。この図から得られた $^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$ 同位体比は 0.00208 であった。8mm カラムの濃縮では、0.00206 の同位体比を得ており、8mm カラム濃縮と 32mm カラム濃縮で矛盾のない結果が得られた。また、得られた同位体分離係数 ϵ (2.5 ± 0.5) $\times 10^{-3}$ も、これまでの結果と誤差の範囲内で一致した。反応速度を示す分離段高さ HETP は $0.36 \pm 0.61\text{cm}$ であった。誤差が大きくなった原因は、32mm カラム中で乱流が起こったこととデータ点が少ないためである。しかし、誤差は大きいとはいえ、これまでと同程度の分

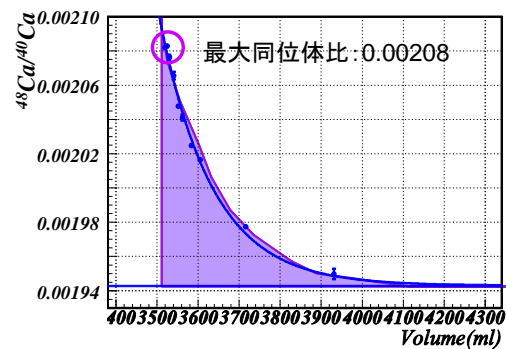
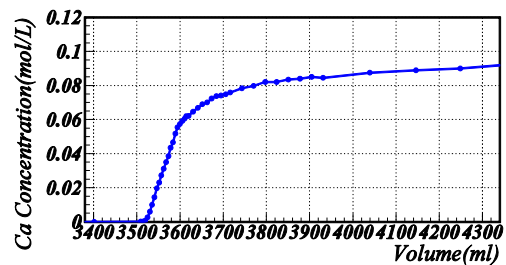


図 4 : 32mm カラムを用いた泳道実験の結果。上図は、カルシウム濃度を測定したクロマトグラフ、下図は同位体濃縮の結果を示している。上図では、溶液流入開始から 3520ml の時点でカルシウムが観測され始めていることがわかる。得られた吸着カルシウム量は 168mmol (=0.071mmol/cc) であった。下図から得られた $^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$ 同位体比は、0.00208 で、これまでの結果と矛盾のない結果が得られた。また、得られた同位体分離係数 ϵ (2.5 ± 0.5) $\times 10^{-3}$ も、これまでの結果を誤差の範囲内で一致した。

離段高さを示している。したがって、溶液の送液速度をさらに上げることで生産性を高めることができることを示している。

以上の結果として、システムの大型化の際にも安定した濃縮結果が得られることを確認することができ、今後実際の濃縮生産に入ることができる。

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 8 件)

① 著者名：S. Umehara, 他
論文標題：Search for neutrino-less double beta decay by CANDLES
雑誌名：AIP Conf. Proc. (査読有)
巻数：1533(2013)115-120

② 著者名：S. Umehara, 他
論文標題：Search for neutrino-less double beta decay with CANDLES
雑誌名：AIP Conf. Proc. (査読有)
巻数：1441(2012)448-450

③ 著者名：S. Umehara, 他
論文標題：Search for neutrino-less double beta decay with CANDLES
雑誌名：J. Phys. Conf. Ser. (査読有)
巻数：375(2012)42018

④ 著者名：I. Ogawa, S. Umehara, 他
論文標題：Background reduction using single-photoelectron counting for WIMP search
雑誌名：Nucl. Instrum. Meth. (査読有)
巻数：A705(2013)1-6

⑤ 著者名：S. Umehara, 他
論文標題：Data Acquisition System of CANDLES Detector for Double Beta Decay Experiment”
雑誌名：Conference Record(2011 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference)
巻数：2011

⑥ 著者名：I. Ogawa, S. Umehara, 他
論文標題：Study of Ca-48 double beta decay by CANDLES
雑誌名：J. Phys., Conf. Ser.
巻数：312(2011)072014

⑦ 著者名：T. Kishimoto, S. Umehara, 他
論文標題：Neutrino-less Double Beta Decay of 48Ca -CANDLES-

雑誌名：AIP Conference Proceedings
巻数：1388(2011)142

⑧ 著者名：I. Ogawa, S. Umehara, 他
論文標題：Low radioactivity CaF₂ scintillator crystals for CANDLES
雑誌名：AIP Conf. Proc.
巻数：1338(2011)116

[学会発表] (計 9 件)

① 発表者：梅原さおり、他 CANDLES collaborator
発表標題：CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(75)-測定状況-
学会名：日本物理学会 第 68 回年次大会,
発表場所：広島
発表年月：2013 年 03 月 29 日

② 発表者：梅原さおり、他 CANDLES collaborator
発表標題：Search for neutrino-less double beta decay by CANDLES
学会名：The 8th China-Japan Joint Nuclear Physics Symposium (CJJNPS2012)
発表場所：北京
発表年月：2012 年10 月18日

③ 発表者：梅原さおり、他 CANDLES collaborator
発表標題：CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(67)-測定状況-
学会名：日本物理学会 2012 年秋季大会,
発表場所：京都
発表年月：2012 年 09 月 11 日

④ 発表者：S. Umehara、他 CANDLES collaborator
発表標題：CANDLES - Search for neutrino-less double beta decay of 48Ca
学会名：The XXV International Conference on Neutrino Physics and Astrophysics (NEUTRINO 2012),
発表場所：京都
発表年月：2012 年 06 月 08 日(ポスター発表)

⑤ 発表者：梅原さおり、他
発表標題：CANDLES 実験のデータ収集システム
学会名：データ収集システム研究会,
発表場所：茨木
発表年月：2012 年 01 月 29 日

⑥ 発表者：S. Umehara、他
発表標題：CANDLES for the study of Double Beta Decay of 48Ca”

学会名：The workshop on "Double Beta Decay and Neutrinos" (DBD11)

発表場所：大阪

発表年月：2011 年 11 月 16 日

⑦ 発表者：S. Umehara、他

発表標題： Data Acquisition System of CANDLES Detector for Double Beta Decay Experiment

学会名：IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference

発表場所：Valencia, Spain.

発表年月：2011 年10 月27日

⑧ 発表者：梅原さおり、他

発表標題： CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(54) -CANDLES 検出器の開発状況 -

学会名：日本物理学会 2011 年秋季大会

発表場所：弘前.

発表年月：2011 年 09 月 19 日

⑨ 発表者：S. Umehara、他

発表標題： Search for Neutrino-less Double Beta Decay with CANDLES

学会名：19th Particles & Nuclei International Conference (PANIC11)

発表場所：Cambridge, USA.

発表年月：2011 年 07 月 28 日

6. 研究組織

(1)研究代表者

梅原 さおり (UMEHARA SAORI)

大阪大学・核物理研究センター・特任助教

研究者番号：10379282