

令和元年6月26日現在

機関番号：14401

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2014～2018

課題番号：26104003

研究課題名(和文) 48Caを用いたニュートリノのマヨナラ性の研究と超高分解能技術の開発

研究課題名(英文) Study of Majorana nature of neutrino by 48Ca and development of ultra high resolution technique

研究代表者

岸本 忠史(Kishimoto, Tadafumi)

大阪大学・核物理研究センター・特任教授

研究者番号：90134808

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 216,900,000円

研究成果の概要(和文)：48Caの0二重ベータ崩壊(0nDBD崩壊)で、将来ニュートリノ質量で数meVの領域の探索のため、以下の3点の研究を進めた。48Ca同位体濃縮技術の実用化：自然存在比0.19%の48Caで2%以上を目指した。高熱伝導率の絶縁物で電気泳動させる新しい濃縮法(MCCCE法)で、16%と目標の約10倍の驚異的な濃縮を達成した。更に改善できる。高分解能蛍光熱量検出器の開発：極低温でCaF2結晶の熱と蛍光を測定して、高分解能化を粒子弁別と両立させる道を拓いた。CANDLES装置で48Caの0nDBD崩壊の観測：遮蔽システムを建設し環境バックグラウンドを2桁減少させて、世界で一番良い感度を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊(0nDBD)の観測は、粒子数の保存則が破れていることを示し、宇宙が物質だけの世界になった原因を解明するだけでなく、現代物理学の理解を根本から変える発見になる。本研究では48Caの0nDBDの観測のための研究を進めた。本研究計画で開発した同位体濃縮法のMCCCE法は簡便な装置で高い濃縮度が得られ、既存の技術で不可能であった同位体が実用化でき0nDBD研究の地図が塗り替えられるポテンシャルを有す。また、他の分野や用途の発展が期待でき、その社会的な意義は大きい。温度変化でエネルギーを測定する方法に蛍光観測を組み合わせる方法0nDBD研究の今後の発展を加速する。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to develop the way to meV region of effective neutrino mass by neutrinoless double beta decay of 48Ca. We studied (1)48Ca enrichment technique, (2) Scintillating bolometer technique to achieve high resolution with particle ID, (3) Measurement of 48Ca 0nDBD by CANDLES experiment. (1) We aimed to enrich 48Ca from the natural abundance (0.19%) to more than 2%. We developed a method MCCCE (Multi-channel counter current electrophoresis) by which we were able to obtain 16% which is surprizingly a high enrichment and 10 times more than our original goal. It has a potential of furtehr improvement. (2) We developed scinitillating bolometer to improve energy resolution with particle ID. We successfully demonstrated that the technique works for CaF2 crystals. (3) We constructed shielding system for CANDLES by which we successfully reduced backgrounds from outside. We gave the world best limit on the lifetime of 48Ca 0nDBD.

研究分野：素粒子原子核宇宙

キーワード：二重ベータ崩壊 ニュートリノ カルシウム48 原子核実験 素粒子実験

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

ニュートリノレス二重ベータ崩壊( $0\nu\beta\beta$ )事象の発見は、ニュートリノのマヨラナ性の直接的な証明であり、「軽いニュートリノ質量の謎」を自然に説明するシーソー機構を強く支持する。また、「宇宙初期の物質粒子生成」の謎の説明として最も有力なレプトジェネシスシナリオにおいては、レプトン数保存則の破れを要求しており、これも  $0\nu\beta\beta$ 崩壊の観測によって検証できる。このような背景から、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の研究は、極めて重要と位置づけられる。

領域発足当初、KamLAND-Zen 実験(日本)と EXO 実験(米)がともに  $^{136}\text{Xe}$  同位体を使用して、ニュートリノ有効質量が約 100 meV の感度で観測結果を公表しており、世界をリードしていた。また、GERDA 実験( $^{76}\text{Ge}$ , 独)、CUORE 実験( $^{130}\text{Te}$ , 伊)が観測を開始し、激しい競争が始まっていた。

$0\nu\beta\beta$ 崩壊観測においては、バックグラウンド量が測定感度を決める。 $^{48}\text{Ca}$  同位体は、崩壊の Q 値(4.27 MeV)が  $0\nu\beta\beta$ 崩壊核の中で最大で、バックグラウンドを究極に抑えられることが期待できる極めて有望な崩壊核である。 $^{48}\text{Ca}$  同位体を使用した  $0\nu\beta\beta$ 崩壊観測実験 CANDLES 計画が、大阪大学を中心とする実験グループによって推進されており、約 300 kg の高純度フッ化カルシウム( $\text{CaF}_2$ )結晶を使用した検出器(CANDLES III(UG))を神岡地下実験施設に設置し、観測を実施している。研究計画において、 $^{48}\text{Ca}$  同位体の濃縮を行い、濃縮  $^{48}\text{CaF}_2$  結晶を現在の結晶と置き換えられれば飛躍的に感度が向上する。

一方で、CANDLES 検出器の測定原理(蛍光のみ測定)では到達エネルギー分解能に限界がある。その為、 $^{48}\text{Ca}$  濃縮実現により 100 kg 規模の  $^{48}\text{Ca}$  同位体が準備できても、ニュートリノを伴う二重ベータ ( $2\nu\beta\beta$ )崩壊が  $0\nu\beta\beta$ 崩壊の Q 値エネルギー領域に染み込んできてバックグラウンドになる。極低温下(10 mK 以下)での温度上昇によるエネルギー測定(熱量測定)を行うことで、分解能 0.5%以下は十分実現可能であり、完全に  $2\nu\beta\beta$ 崩壊のバックグラウンドを排除出来る。 $^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$ 崩壊観測では、環境放射能は Q 値(4.268MeV)よりも低エネルギーのため影響が限定的であるが、熱量測定のみの場合、 $\text{CaF}_2$  結晶内部の  $^{238}\text{U}$  不純物の  $\alpha$ 崩壊(Q $\alpha$ 値 4.270MeV)が、深刻なバックグラウンド候補となる。熱量測定に加えて、蛍光量も同時に測定することで  $\alpha\beta$ 粒子識別が可能となり、CANDLES III(UG)でのバックグラウンド除去技術と併せて、バックグラウンドフリー観測を実現できる。

以上のことから、本研究計画において、 $^{48}\text{Ca}$  同位体濃縮および、熱量検出器と蛍光検出器の性能を併せ持った高分解能検出器の開発を提案した。

### 2. 研究の目的

レプトン数保存則の破れに対応するニュートリノのマヨラナ性の検証を目指す。そのために、 $^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$ 崩壊の研究を推進する。 $^{48}\text{Ca}$  同位体濃縮技術の実用化と、高分解能蛍光熱量検出器の開発を進め、並行して CANDLES 装置を用いて  $^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$ 崩壊の観測をおこなう。将来的に、数 meV 領域までのマヨラナ性の検証を可能にする実験へ成長することを目指す。

### 3. 研究の方法

高感度  $0\nu\beta\beta$ 崩壊測定のための 1.  $^{48}\text{Ca}$  濃縮、 2. 蛍光熱量検出器開発、 3. 二重ベータ崩壊測定を実施する。

$^{48}\text{Ca}$  濃縮においては、電気泳動法を用いた高濃縮技術確立を行い、これまでに開発した化学法による濃縮技術をもとに、濃度 10 倍(2 %) の  $^{48}\text{Ca}$  生産装置の建設をする。濃縮  $^{48}\text{Ca}$  を、 $\text{CaF}_2$  結晶に合成する技術を確認する。また、 $^{48}\text{Ca}$  の濃縮度をさらに上げるための濃縮技術(レーザー濃縮等)の開発も行う。

蛍光熱量検出器開発においては、本新学術領域に参加する熱量検出器開発経験者の協力を得て、 $\text{CaF}_2$  結晶を熱量検出器として開発する。国内での開発研究と並行して、蛍光熱量検出器開発では先行する海外の実験グループとの共同研究を模索し、バックグラウンド除去性能が極めて高く(粒子弁別能力 99.9%以上)、エネルギー分解能の極めて良い(Q 値で 0.5%以下) 検出器を開発する。このことにより、環境放射線およびニュートリノを伴う二重ベータ崩壊事象による両バックグラウンドから解放されたバックグラウンドフリー検出器を実証する。

$^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$ 崩壊の観測を行う。現有の二重ベータ崩壊測定装置 CANDLES III(UG) のデータ収集システムをアップグレードし、バックグラウンド除去性能を増強する。また、Q 値に影響をあたえるバックグラウンド源の徹底的な調査を行い、検出器を高分解能化し、大型化した場合にバックグラウンドフリー測定が実現されるよう検出器改良を行い、 $^{48}\text{CaF}_2$  結晶検出器を使用した  $0\nu\beta\beta$ 探索におけるバックグラウンド低減手法とバックグラウンドフリー測定実現手法を確認する。

### 4. 研究成果

自然存在比が 0.19%と非常に低い  $^{48}\text{Ca}$  を 2 %以上(10 倍以上)に濃縮するための、電気泳動法を基礎とする多チャンネル向流電気泳動法(Multi-Channel Counter Current Electrophoresis) MCCCE 法で濃縮に取り組んで来た。細い泳動路を絶縁物で熱伝導率の高い物質(BN の様に格子振動が熱を運ぶ物質)で作り、高い電圧で泳動を行えば高い濃縮度と大量生産を両立出来る新しい方法で、水溶液中の  $^{48}\text{Ca}$  と  $^{40}\text{Ca}$  イオンの電場中での移動度の差を利用して分離するときの効率を、桁違いに高める方法である。図 1 に装置の概念図を示す。直径が

8cm のコンパクトな装置である。2015 年の論文 (PTEP 10.1093/ptep/ptv063) で、厚さ 10mm の BN (窒化ホウ素) の板を用いる小さな装置  $^{48}\text{Ca}/^{43}\text{Ca}$  比で 3 倍 ( $^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$  比に換算して 6 倍) の濃縮度の達成を報告した。特許も取得した。その効果の大きさから実用化はすぐと楽観的に考えたが、現実には多くの困難があった。実際には理解してなかった多くの条件が隠れていた。この間に ICP-MS 装置で 4000 以上の作成したサンプルの同位体比を測定し、研究を進めた。泳動路を構成する窒化ホウ素 (BN) の厚みを 10mm から 20mm にして長くすることで、装置の改良とパラメーターの探索を進めた結果、 $^{48}\text{Ca}/^{43}\text{Ca}$  比で自然存在比のほぼ 100 倍の濃縮度が得られた。それを  $^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$  比との相関を測定することで自然存在比の 0.19% がほぼ 100 倍の 16% になっていることを確認した。それを図 2 に示す。市販の  $^{48}\text{Ca}$  濃縮同位体を購入し、クロスチェックを行ってこの結果の正しさを確認した。理論的考察から BN を厚くすることで更に高い濃縮度が期待できることも示した。また、その時、取り出す  $^{48}\text{Ca}$  の量に変化がないことが期待できる。以上のことから、カルシウム同位体に対して、新しい高濃縮技術が誕生したと言え、今後 CANDLES が推進する  $^{48}\text{Ca}$  を使用した  $0\nu\beta\beta$  崩壊探索の飛躍的感度向上に大きな期待が持てる結果を示せた。

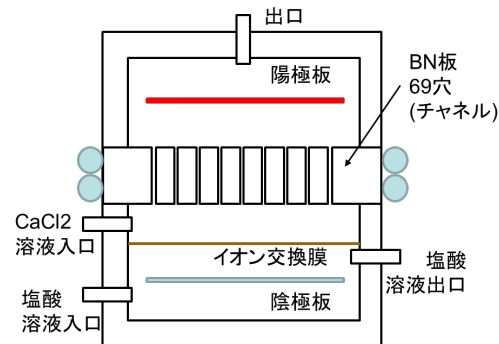


図 1 MCCCE 装置の概念図

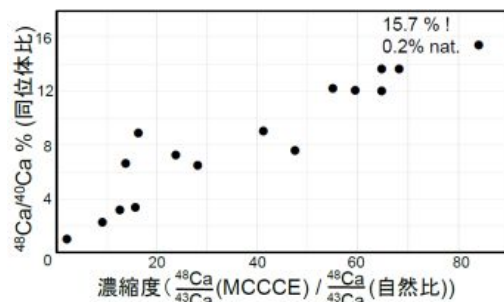


図 2  $^{48}\text{Ca}/^{43}\text{Ca}$  比が示す濃縮度と  $^{48}\text{Ca}/^{40}\text{Ca}$  の同位体比の相関

CANDLES III (UG) 検出装置を利用した  $^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$  崩壊探索を進める中で、高エネルギー領域にバックグラウンドが観測され、その低減を行った。バックグラウンドを低減するためにその起源の調査を行い、実験室を取り囲む岩盤中の元素や、検出器構成物質が環境中性子を吸収し、その捕獲反応後に放出する数 MeV の高エネルギーガンマ線が要因であることを突きとめた。このバックグラウンドを低減するために CANDLES III 検出器の改良として、鉛遮蔽体と中性子吸収用のホウ素シートからなる遮蔽システムの設計を行い、導入を行った。導入した遮蔽システムで、ガンマ線と中性子起源のバックグラウンドをほぼ 2 桁減少させ、 $0\nu\beta\beta$  崩壊の観測を進めた結果、 $^{48}\text{C}$  を使用した観測では世界で一番良い感度を達成した。低バックグラウンド測定を行い、観測データを順調に取得した結果、新たに 131 日分のデータを解析し結果を得ることに成功した。図 3 は、測定時間 131 日のデータを使用して、 $0\nu\beta\beta$  崩壊測定用の事象選択を行った結果のエネルギースペクトルを示す。解析可能な  $\text{CaF}_2$  結晶 (95 個) をすべて使用した結果、 $^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$  崩壊の半減期  $6.2 \times 10^{22}$  年という下限値を得た。高純度の結晶 (27 個) を選択して解析を行ったところ、Q 値の領域 (4.17 - 4.48 MeV) にはバックグラウンドが観

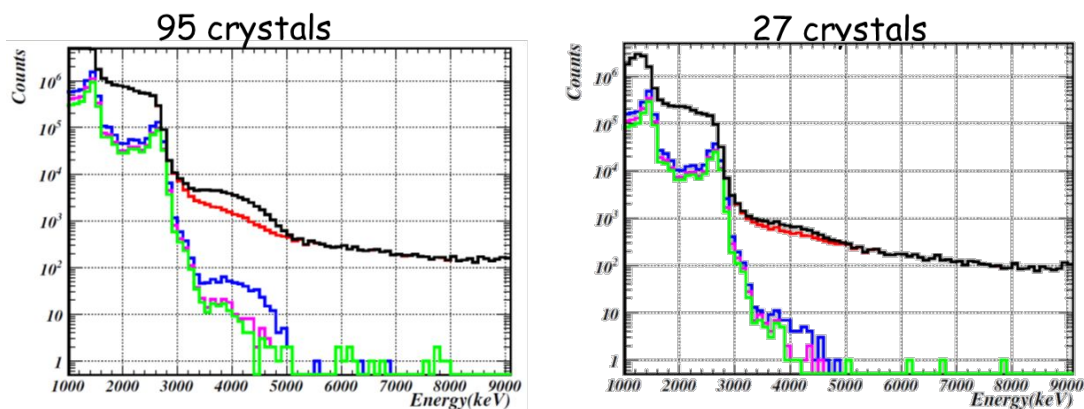


図 3: CANDLES III 検出器の  $\text{CaF}_2$  シンチレータで得られたエネルギースペクトル。131 日の測定データに、各種イベントセレクションを行うことで得られた。バックグラウンド事象である  $^{212}\text{Bi}$  の崩壊事象を除去 (赤色) し、液体シンチレータが発光した事象 (青色) および  $^{208}\text{Tl}$  事象を除去 (ピンク色) 最後複数結晶での事象を除去 (緑色) する解析を行った後に、Q 値領域にバックグラウンド事象が観測されていない (高純度 27 結晶の解析: 右図) ことが確認できる。

測されておらず、バックグラウンドフリー測定を実証することに成功した。本計画研究の期間終了まで観測が継続され、 $^{48}\text{Ca}$  の  $0\nu\beta\beta$  崩壊測半減期の下限值に対して世界最高感度を更新し続けている。

蛍光熱量検出器開発において、 $\text{CaF}_2$  結晶の低温での特性を調べるために、Yong-Hamb Kim 氏(韓国 IBS 研究所)らとの共同研究を行った。 $\text{CaF}_2$  結晶から熱量と蛍光量の両方を測定できることが世界で初めて示され、研究の可能性が明確になってきた。図 4 には、蛍光熱量検出器による粒子識別とエネルギースペクトルの測定結果を示している。 $\alpha$ 線と $\beta/\gamma$ 線を高い分離能(5 $\sigma$ 以上)で分離できることを示す(図 4-A)と同時に、 $\text{CaF}_2$  結晶内意図的に含有した 30mBq 程度のウラン系列崩壊核の放射性不純物による $\alpha$ 線エネルギースペクトル(図 4-B)から、エネルギー分解能としてシンチレーション光による観測よりも高い分解能を実現することに成功した。エネルギー分解能には結晶内の場所依存性による影響が多く残っていることが解析の結果示され、ウラン系列の連続する崩壊( $^{222}\text{Rn} \rightarrow ^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Po}$ )を捉えることで位置依存性を消せば高い分解能が得られることを確認し(図 5 参照)、エネルギー分解能として 0.18%が達成できることを示し、目標とする高エネルギー分解能を達成できた。

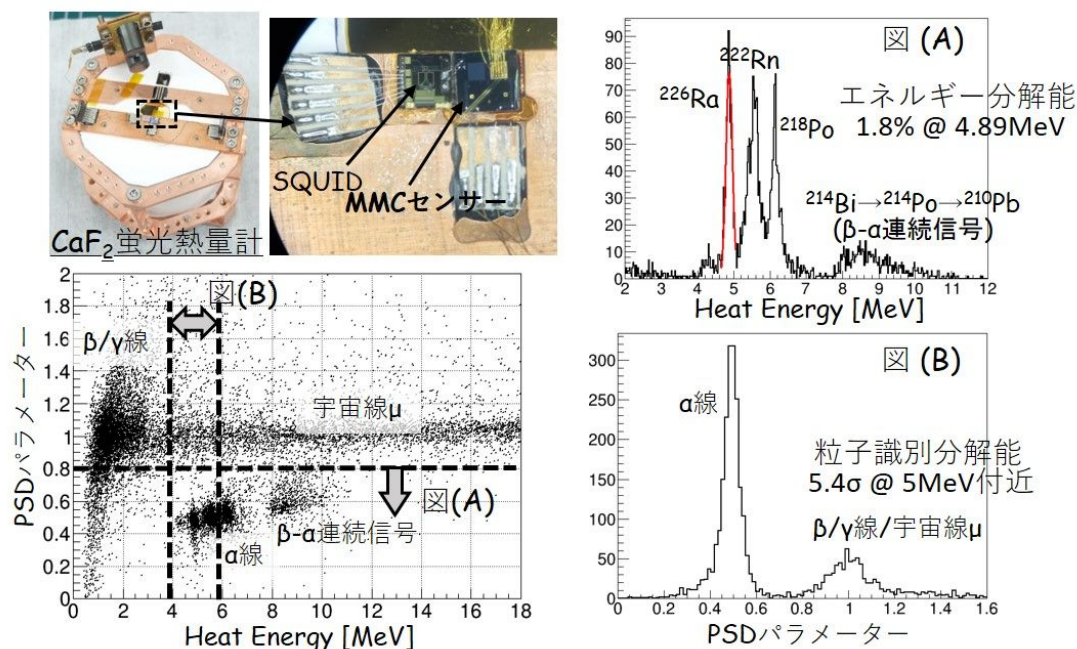


図 4 :  $\text{CaF}_2$  蛍光熱量計の世界初データ。熱量と蛍光量の両信号の特性を使い、粒子識別パラメーターを定義して(左下図の縦軸)、エネルギー分解能(A)と粒子識別能(B)が定量的に与えられた。

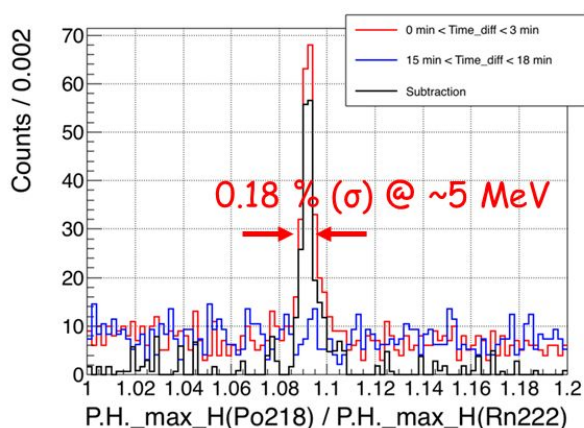


図 5 :  $\text{CaF}_2$  結晶を使用した蛍光熱量検出器において、ゲインの結晶内位置位置依存性を除去するため、ウラン系列の連続する崩壊( $^{222}\text{Rn} \rightarrow ^{218}\text{Po} \rightarrow ^{214}\text{Po}$ )を使用した解析結果エネルギー分解能として 0.18%@5 MeV を得ることができた。

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 22 件)

1. 岸本忠史、「ニュートリノの質量と 2 重ベータ崩壊実験」パリティ Vol.34 No.4
2. Saori Umehara, Masao Nomura, Yasuhiko Fujii, Shin Okumura, Toyohiko Yano & Tadafumi Kishimoto " Calcium isotope separation by band chromatography using 18-crown-6-ether

- resin”, Journal of Nuclear Science and Technology,55, 1473-1480 (査読有)
3. K. Nakajima,他 (全 43 名中 16 番目) “Background studies of high energy  $\gamma$  rays from (n,  $\gamma$ ) reactions in the CANDLES experiment”, Astroparticle Physics, 100(2018), 54-60 (査読有)
  4. 岸本忠史, 「物質優勢宇宙の誕生の謎に迫る」, 日本物理学会誌, vol.72-7, P480-481
  5. Shin Okumura, Saori Umehara, Tadafumi Kishimoto, Masao Nomura, Yasuhiko Fujii, Tatsuya Suzuki, Masaki Ozawa, “Recent Studies on Ca Isotope Separation by Crown-Ether Resin Chromatography”, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, Vol. 16, 11-14 (査読有)
  6. Umehara S, Okumura S, Kishimoto T, Fujii Y, Nomura M, Kaneshiki T and Ozawa M, “Chromatographic Separation of Calcium Isotopes using Benzo-18-Crown-6-Ether Resin and Acetic Acid Solution”, Austin Chromatography,3(1), 1040 (査読有)
  7. Shin Okumura, Saori Umehara, Yasuhiko Fujii, Masao Nomura, Toshitaka Kaneshiki, Masaki Ozawa, Tadafumi Kishimoto, “Separation of calcium-48 isotope by crown ether chromatography using ethanol/hydrochloric acid mixed solvent”, Journal of Chromatography A,1415, 67-72 (査読有)
  8. S. Umehara, T. Kishimoto, H. Kakubata, M. Nomura, T. Kaneshiki, T. Suzuki, Y. Fujii, S. Nemoto, “A basic study on the production of enriched isotope  $^{48}\text{Ca}$  by using crown-ether resin”, Progress of Theoretical and Experimental Physics,2015 053C03 (査読有)
  9. K.Suzuki 他 (全 28 名中 10 番目) “New DAQ System for the CANDLES Experiment”, Nuclear Science, IEEE Transactions,62 (3), 1122-1127 (査読有)
  10. T.Maeda 他 (全 31 名中 11 番目), “The CANDLES Trigger system for the study of double beta decay of  $^{48}\text{Ca}$ ”, Nuclear Science, IEEE Transactions,62 (3), 1128-1134 (査読有)
  11. T.Kishimoto, K. Matsuoka, T. Fukumoto, S.Umehara, “Calcium isotope enrichment by means of multi-channel counter-current electrophoresis for the study of particle and nuclear physics”, Progress of Theoretical and Experimental Physics,Volume 2015, Issue 3, 033D03 (査読有)
  12. K.Nakajima 他 (全 42 名中 17 番目) “Performance of Upgraded Shielding System in CANDLES”, AIP Conference Proceedings,1921, 060003(6p)
  13. W.M.Chan (全 24 名中 2 番目) “Development of CANDLES low background HPGe detector and half-life measurement of  $^{180\text{m}}\text{Ta}$ ”, AIP Conference Proceedings,1921, 030004(6p)
  14. T.Iida 他 (全 28 人中 10 番目) “Status and future prospect of  $^{48}\text{Ca}$  double beta decay search in CANDLES”, Journal of Physics: Conference Series,718, 062026
  15. K.Nakajima 他 (全 25 名中 3 番目), “Low Background Techniques in CANDLES”, AIP Conf. Proc.,1672, 110004

〔学会発表〕(計 177 件)

1. T. Kishimoto, “CANDLES for the study of double beta decay of  $^{48}\text{Ca}$  and its future prospect”, Workshop session of The Joint meeting of the Nuclear Physics Divisions of the APS and the JPS (Hawaii2018) 国際学会、招待講演
2. T. Kishimoto, “CANDLES for the study of  $^{48}\text{Ca}$  double beta decay and its future prospect”, International symposium on Revealing the history of the universe with underground particle and nuclear research, March 7-9, Tohoku Univ.,2019.国際学会、招待講演
3. 吉田 齊 「ニュートリノレス二重ベータ崩壊探索の現状と将来」(招待講演) 日本物理学会 2017 年秋季大会 シンポジウム「地下実験による宇宙・素粒子・原子核研究」 2017 年 9 月 12 日 宇都宮大学
4. 岸本忠史 「 $^{48}\text{Ca}$  の新濃縮法の開発と CANDLES 実験」(招待講演)、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 26 日大阪市立大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 2 件)

名称：電気泳動装置、電気泳動法および電気泳動法をもちいた濃縮・分離・分析方法  
 発明者：岸本忠史  
 権利者：岸本忠史  
 種類：特許  
 番号：6207148  
 出願年：平成 24 年  
 国内外の別：国内

名称：電気泳動装置、電気泳動法および電気泳動法をもちいた濃縮・分離・分析方法  
 発明者：岸本忠史

権利者：国立大学法人大阪大学  
種類：特許  
番号：6425958  
出願年：平成 26 年  
国内外の別： 国内

取得状況（計 2 件）

名称：電気泳動装置、電気泳動法および電気泳動法をもちいた濃縮・分離・分析方法  
発明者：岸本忠史  
権利者：岸本忠史  
種類：特許  
番号：6207148  
取得年：平成 24 年  
国内外の別： 国内

名称：電気泳動装置、電気泳動法および電気泳動法をもちいた濃縮・分離・分析方法  
発明者：岸本忠史  
権利者：国立大学法人大阪大学  
種類：特許  
番号：6425958  
取得年：平成 30 年  
国内外の別： 国内

〔その他〕

ホームページ：<http://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/candles/>

## 6 . 研究組織

(1)研究分担者  
なし

(2)研究協力者  
研究協力者氏名：能町正治  
ローマ字氏名：Masaharu Nomachi

研究協力者氏名：玉川 洋一  
ローマ字氏名：Youichi Tamagawa

研究協力者氏名：小川 泉  
ローマ字氏名：Izumi Ogawa

研究協力者氏名：裕 隆太  
ローマ字氏名：Ryuta Hazama

研究協力者氏名：梅原 さおり  
ローマ字氏名：Saori Umehara

研究協力者氏名：吉田 斉  
ローマ字氏名：Sei Yoshida

研究協力者氏名：飯田 崇史  
ローマ字氏名：Takashi Iida

研究協力者氏名：中島 恭平  
ローマ字氏名：Kyohei Nakajima

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。