

令和元年6月3日現在

機関番号：14501

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：26104008

研究課題名（和文）極低放射能技術による宇宙素粒子研究の高感度化

研究課題名（英文）Improvements of astroparticle physics experiments with low-radioactivity techniques

研究代表者

竹内 康雄（Takeuchi, Yasuo）

神戸大学・理学研究科・教授

研究者番号：60272522

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 68,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、これまで国内の小規模地下実験グループレベルで蓄積されていた極低放射能技術のノウハウを結集し、「マイクロベクレル」をキーワードに、実験グループ間の枠を超えた連携を実現し、次世代の極低放射能技術を早期に確立することを目指した。技術的連携を維持するための研究会を定期的に主催する等の活動に取り組み、新しい放射能除去技術の開発や新しい高感度分析装置の開発を実現し、複数の低減技術・分析感度において、目標とする感度に達した。またこれらのノウハウを蓄積・公開するための独自放射能データベースの整備も行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

複数の研究トピックにおいて、「マイクロベクレル」レベルの極低放射能技術の開発に成功し、世界最高感度のニュートリノ観測実験（計画研究A、C）や、宇宙暗黒物質探索実験（計画研究B）の推進に貢献した。また、次世代のニュートリノ観測実験の設計に重要な放射能分析データを本研究が初めて提供し、世界最先端レベルの研究活動のサポートをした。極低放射能技術に関しては、これまで国内の各地下実験グループ内で比較的少人数で行われていたが、実験グループの枠を超えて連携するきっかけを与えることができた。

研究成果の概要（英文）：In this research, we aimed to establish the next-generation low-background technology early, combining the know-how of the low-background technologies that has been accumulated in small underground experimental groups in Japan so far. We aimed to realize the cooperation beyond the experiment groups with a keyword of "Micro Becquerel". We worked on activities such as organizing topical workshops regularly to maintain technical cooperation. We also developed new radiation removal technologies and new high-sensitivity radioactivity measurement techniques. We realized the target sensitivities on some of these techniques. We also maintained our own radiation database to accumulate and share these know-how.

研究分野：宇宙素粒子実験

キーワード：低放射能 ラドン NaI 純水 バックグラウンド 地下実験 素粒子実験 暗黒物質

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

1. 研究開始当初の背景

地下は、宇宙線の影響を大幅に低減することが可能であるため、太陽及び超新星ニュートリノの観測、ニュートリノを伴わないダブルベータ崩壊の観測、宇宙暗黒物質(ダークマター、DM)の直接探索など、極低バックグラウンドを要求する物理実験に最適である。ニュートリノおよびDMに対する主要なバックグラウンド(BG)として、 ^{222}Rn (ラドン)が深刻であり、世界各地の地下実験施設において極微量ラドン測定に関する研究が行われていた。

検出器本体に含まれる放射性不純物は、数 mBq/kg といった極めて低い濃度であっても深刻な感度の劣化を引き起こす。世界の他のグループでは数 $\mu\text{Bq/kg}$ レベルの超高感度計測技術を開発し、極めて高感度なDM探索装置の開発がなされていた。

検出器本体を取り囲む周辺部材の表面からの放射線も多くの極低BG検出器に対して共通のBGとなる。特に深刻な影響を及ぼす線放出核種の濃度測定に関しては、市販の線検出器では感度が足りない状況であった。

国外では極低放射能計測技術に特化したLRT (Low Radioactivity Techniques) 国際会議の開催や、複数の研究機関やグループが協力して放射能データベースが構築されつつあるなど、極低放射能計測技術の研究開発は、全ての次世代の極低BG検出器において不可欠な課題となっていた。

研究開始当初は、国内の地下実験関係者間での連携体制構築の機運が高まってきていた。極低放射能技術に特化した懇談会を開催し、国内の関連研究者約80名による活発な議論が行われた。このような背景の下、各地下実験グループのノウハウを結集し、地下実験での共通の低放射能技術開発を加速することを目指して、本研究が開始された。

2. 研究の目的

本研究では、これまで国内の小規模グループレベルで蓄積されていた極低放射能技術のノウハウを結集し、実験グループの枠を超えて連携して研究開発に取り組むことにより、次世代の極低放射能技術を早期に確立することを目的とした。そして、本領域の他の計画研究において宇宙素粒子原子核研究の高感度化に資することを目指した。また、研究の過程において、極低放射能技術の高性能化を早期に実現するためには、領域全体の技術的連携を深めて維持することが重要であるとの認識に至った。中間評価以後は、そのような活動も本研究の目的とした。

3. 研究の方法

本研究では以下の4つのトピックに関して、それぞれ連携して取り組んだ。

(1) 極微量放射性不純物の測定と除去

「マイクロベクレル」をキーワードに、極低レベルの放射能の分析と低減に取り組んだ。放射能の低減に関しては、特にA02と連携をし、NaIシンチレーター内部の不純物除去技術の開発に取り組んだ。分析技術に関しては、我々が開発した超高感度ラドン検出器を用いて、各種の高感度ラドン分析に応用した。また表面アルファ分析技術に関して、B01やB02と連携をして、複数の手法による高感度分析技術の開発を進めた。

(2) 超高感度放射性物質スクリーニングシステムの構築

東京大学宇宙線研究所附属神岡宇宙素粒子研究施設が管理する「坑内実験室A」を共同利用し、3種類の分析装置(ラドン分析装置、結晶中不純物分析装置、ガス飛跡検出技術を応用した表面アルファ線分析装置)を開発・構築した。これらの装置を用いて、B01、B02、C01等で進められている地下実験関係の放射能分析にも取り組んだ。

(3) 極低BG素材データベース及び情報発信システムの構築

(1)および(2)によって得られた情報は貴重なノウハウの塊である。情報の厳重な管理とともに適切な情報発信を行うために、独自の放射能データベースの開発に取り組んだ。また、C01と連携し、神岡坑内の環境ラドンモニターシステムの整備に取り組んだ。これらの情報は、適切な情報管理の下、領域関係者に公開された。

(4) 領域内の技術的連携の推進

地下実験における極低放射能技術について議論するトピカル研究会を年に一度定期的に開催した。特に現行の各実験グループで問題となっているBG源について情報を交換・共有し、実験装置の高感度化に向けた低BG技術の研究開発のアイデア等に関して議論を行ってきた。本研究会では実験系の全ての計画研究と全ての公募研究からの研究報告を行ってもらうこととした。また(2)の坑内実験室Aにおいて、実験グループの枠を超えて研究活動ができるようなスペースを、本領域の研究期間中維持し続けた。

4. 研究成果

本研究で取り組んだ前述の4つのトピックに関して、それぞれ以下のような成果が得られた。

(1) 極微量放射性不純物の測定と除去

NaI シンチレーターの不純物除去技術の開発に関して、高純度結晶の試作と評価を行った。研究期間中に得られた最も純度の高い結晶では、残留する不純物は、 ^{210}Pb については $29 \pm 7 \mu\text{Bq/kg}$ 、 ^{226}Ra については $57 \pm 4 \mu\text{Bq/kg}$ 、Th 系列は $1.5 \pm 1.9 \mu\text{Bq/kg}$ となった。これらの残留不純物量は、中間評価で設定し直した目標値 ($20 \mu\text{Bq/kg}$) を一部達成できていないが、世界最高感度の NaI(Tl) を使用している DAMA/LIBRA と同等である。放射性の ^{40}K を含むカリウムの濃度も低減する必要がある。カリウム濃度は、本研究計画が始まってから飛躍的に純度が向上し、最終的に再結晶法により、目標とする 20ppb を達成した。図 1 に、本研究で開発した不純物純化手法の違いによる BG レベルの比較を示す。これらのノウハウを用いて、2018 年度には、宇宙暗黒物質探索用の高純度かつ大型の NaI(Tl) 検出器を試作した。

ラドン分析技術に関しては、我々が開発した超高感度ラドン検出器 (80L ラドン検出器) の高感度化に取り組み、またラドン検出器を応用した新たな分析装置の開発と運用に取り組んだ。

80L ラドン検出器の高感度化に関しては、検出器内部バックグラウンドの低減、検出効率の改善に取り組んだ。に関して、検出器内部に銅電鍍を施し内部バックグラウンドの低減を試みたが、これまでの手法 (ステンレス表面の接触型電解研磨) を超える改善は得られなかった。に関してラドン娘核種を静電場により捕集しアルファ崩壊を測定するためのフォトダイオードをこれまでの 18mm 角から 30mm 角の製品に入れ替えて、較正試験を行った。その結果、較正定数の湿度依存性試験の高湿度の環境では、 $10 \sim 20\%$ 程度の改善が見られた。

ラドン検出器を応用した新たな分析技術の開発と運用に関して、純水中の高感度ラドン濃度測定については、活性炭によるラドン濃縮の系統誤差を削減する手法を計画研究 C01 と共同で開発し、スーパーカミオカンデ水中で 0.4mBq/m^3 ($=0.4 \mu\text{Bq/kg}$) の感度での測定を行った。本測定に関する論文を準備中である。キセノン中のラドン不純物の分離技術の開発について、新規ナノ素材によるキセノン中のラドン不純物の吸着性能試験を行い、計画研究 B01 (XMASS) が用いている活性炭の約 1000 倍の吸着性能を有する素材を中間評価までに発見したが、その後の詳細分析の結果、キセノンに対しても高い吸着性能を示すことが明らかになり、キセノンとラドンの分離能力に関しては非常に高い感度を示すものではないことが判明した。しかし、条件によってはキセノン中のラドンの計数率が 61% 低減することが判明し、B01 (XMASS) が用いている活性炭より分離性能が高いことが明らかになった。現在開発内容を報告する論文を執筆中である。

表面アルファ分析技術に関して、B01 と連携し、既製品 (XIA Ultra-Lo-1800) に、純ガスラインの改良を施す等の独自の改善を行い、高純度銅板 (6N) を用いた測定により、 $0.006 \mu\text{Bq/cm}^2$ の感度で分析が可能であることを示した。また、B02 と連携し、ガス飛跡検出技術を用いた表面アルファ分析装置 (図 2) を開発し、 $0.7 \mu\text{Bq/cm}^2$ の感度を達成した。ガス飛跡検出技術を用いた表面アルファ分析装置に関して開発内容をまとめた論文を執筆し、投稿した。

中間評価以後に研究組織を強化して取り組んできた、イオン交換樹脂に含まれる放射性不純物については、製造過程で使用される硫酸が原因であることを突き止めた。そのため、高純度の硫酸を使用することで改善できることが判明した。しかしイオン交換樹脂は大量生産する必要があるため製造コストと許容できる不純物量を鑑み、電子産業用硫酸で製造すればコストと性能の両方の要求を満たせることを確認した。

(2) 超高感度放射性物質スクリーニングシステムの構築

宇宙線研究所が神岡地下で管理する研究用スペース「坑内実験室 A」の一部を共同利用する申請を本計画研究の研究者が中心となり行い、ラドン分析装置 (C01 と連携)、結

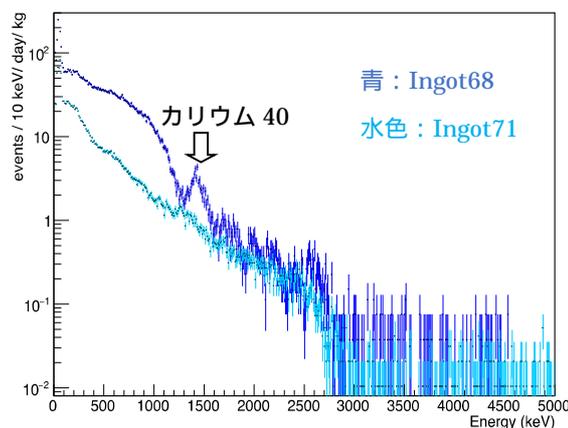


図 1: イオン交換樹脂によって純化した結晶 (Ingot68) と、再結晶法による純化を施した結晶 (Ingot71) による、低 BG 測定の結果

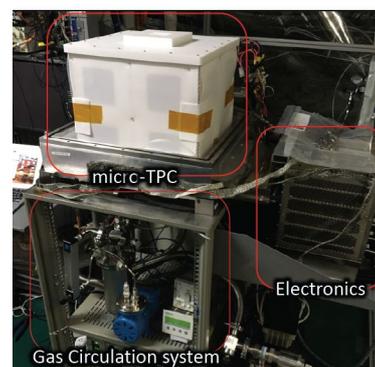


図 2: ガス飛跡検出技術を用いた表面アルファ分析装置

晶中不純物分析装置(A02 と連携)、ガス飛跡検出技術を応用した表面アルファ線分析装置(前述、B02 と連携、図 2)の開発・構築・運用に取り組んだ。ラドン分析装置に関して、希ガス中のラドンの吸着試験装置の開発と試験運用の後、空气中及び水中でのシート状素材のラドン透過率分析装置を開発・運用した。図 3 に水中での膜透過ラドン分析装置を示す。これらの装置は測定技術の開発後、B01 の XMASS 実験や C01 に関連する Hyper-Kamiokande 計画向けの分析に用いた。空气中でのラドン拡散係数に関して 2.8×10^{-11} [cm²/s]の測定感度を達成し、それぞれの分析目的を十分達成することができた。結晶中不純物分析装置(図 4)については、2016 年度までに開発を行い、その後は分析装置の運用を行った。本分析装置の測定感度は、10 日間の測定で約 5 μ Bq/kg である。これまでに、CaF₂ について各種溶融品や結晶の分析を行い、結晶化の過程での高純度化の評価を行った。また、A02 の CANDLES 入れ替え用の CaF₂ 結晶のスクリーニング分析(約 20 個)を行った。ガス飛跡検出技術を応用した表面アルファ線分析装置に関しては、前述の図 2 のシステムの開発に取り組んだ。

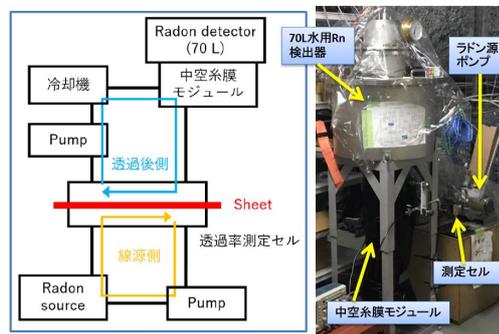


図 3: 水中シート状素材透過ラドン分析装置



図 4: 結晶中不純物分析装置

(3) 極低 BG 素材データベース及び情報発信システムの構築

既存の海外の放射能データベース(radiopurity.org)の開発者と情報交換を行い、本新学術研究用の放射能データベースの概念設計と構築に取り組んだ。既存スクリプトの修正を行い、試験サーバーを設置し、領域内での試験運用を行った。特にインターフェースの改良(検索機能等の強化)を行い、環境データに関する情報入力にも対応させた。蓄積したデータは、2019 年 3 月までに 404 件となった。最終的に、本領域内の各研究グループがアクセスできる環境に放射能データベースシステムを整備し運用を開始した。今後、セキュリティ関係の設定を行った後コミュニティに公開できる見込みである。

また、神岡での放射能データベースの整備の一環として、神岡坑内の各地点における環境ラドンモニターの整備を C01 と連携して進めた。これまで宇宙線研究所や岐阜大学で C01 (SK-Gd)、B01 (XMASS)のために開発していたラドン測定システムを、本研究において改良した。そして、新たに開発したシステム一式を A01 (KamLAND)、A02 (CANDLES)へ提供し、神岡地下の各実験エリアの環境ラドン濃度を統一的に測定する環境を整えた。

(4) 領域内の技術的連携の推進

地下実験における極低放射能技術について議論するトピカル研究会を年に一度定期的に開催した。特に現行の各実験グループで問題となっている BG 源について情報を交換・共有し、実験装置の高感度化に向けた低 BG 技術の研究開発のアイデア等に関して議論を行った。本研究会では毎回 1 つ共通の課題を取り上げ重点的に議論を行った。第 1 回から 4 回までは、「ラドン BG」、「中性子 BG」、「高感度ゲルマニウム検出器分析技術」、「高感度 ICPMS 分析技術」をそれぞれ取り上げた。最終の第 5 回には本研究で推進してきた各研究トピックの総括を行った。また 2 年目以後は、毎回全ての実験系の公募研究グループからの報告も行ってもらい、領域内の全ての実験系研究者間の技術的連携の維持に努めた。また、「実験シフトの現状と省力化」等の特徴のあるセッションを設け、技術的なノウハウの共有にも努めた。各極低放射能技術研究会は、毎回 50~60 名程度の参加者があり、活発な議論が行われた。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 6 件)

- (1) “Dark Matter Search by Means of Highly Radiopure NaI(Tl) Scintillator”, K. Fushimi, D. Chernyak, H. Ejiri, K. Hata, R. Hazama, S. Hirata, H. Ikeda, K. Imagawa, K. Inoue, A. Kozlov, R. Orito, T. Shima, Y. Takemoto, S. Umehara, K. Yasuda, and S. Yoshida, JPS Conf. Proc. 24, 011011 (2019) (査読あり)

DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.24.011011>

- (2) “Measurement of radon concentration in Super-Kamiokande’s buffer gas”, Y. Nakano, H. Sekiya, S. Tasaka, Y. Takeuchi, R. A. Wendell, M. Matsubara, and M. Nakahata, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A, 867 (2017), pp. 108-114 (査読あり)

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.04.037>

- (3) “High purity NaI(Tl) scintillator to search for dark matter”, K. Fushimi, H. Ejiri, R. Hazama, H. Ikeda, K. Imagawa, K. Inoue, G. Kanzaki, A. Kozlov, R. Orito, T. Shima, Y. Takemoto, Y. Teraoka, S. Umehara, K. Yasuda, and S. Yoshida, JPS Conf. Proc. 11, 020003 (2016) (査読あり)

DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSCP.11.020003>

- (4) “Development of a high-sensitivity 80 L radon detector for purified gases”, K. Hosokawa, A. Murata, Y. Nakano, Y. Onishi, H. Sekiya, Y. Takeuchi, and S. Tasaka, PTEP 2015, 033H01 (査読あり)

DOI: <https://doi.org/10.1093/ptep/ptv018>

〔学会発表〕(計 118 件 (国際発表 25 件、国内発表 93 件))

- (1) “Recent results and future prospects of Super-Kamiokande”, Y. Takeuchi, The 10th International Workshop on Ring Imaging Cherenkov Detectors (RICH 2018), Russian Academy of Sciences, Russia, 31 July, 2018 (招待講演)
- (2) 「宇宙暗黒物質探索レビュー」, 伏見賢一, シンチレーター研究会 SMART2017(山形市), 2017 年 11 月 11 日(招待講演)
- (3) 「XMASS の中性子バックグラウンド」, 竹田敦, 「極低放射能技術」研究会 2016 (徳島大 けやきホール), 2016 年 3 月 15 日(招待講演)
- (4) “PICO-LON dark matter search”, K. Fushimi, DBD2016, Osaka, Japan, Nov. 8, 2016 (招待講演)
- (5) “Quest for Lowest Energy Neutrinos in Super-Kamiokande”, H. Sekiya, LRT2015, Univ. of Washington, USA, Mar. 20, 2015 (招待講演)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

- (1) 極低放射能技術による宇宙素粒子研究の高感度化

http://www.lowbg.org/ugnd/?page_id=55

- (2) 極微量ラドンの測定技術の開発研究

<http://ppwww.phys.sci.kobe-u.ac.jp/laboratory/radon/index.html>

6 . 研究組織

- (1)研究分担者

研究分担者氏名：伏見 賢一

ローマ字氏名：FUSHIMI, Ken-Ichi

所属研究機関名：徳島大学
部局名：大学院社会産業理工学研究部（理工学域）
職名：教授
研究者番号（8桁）：90274191

研究分担者氏名：関谷 洋之
ローマ字氏名：SEKIYA, Hiroyuki
所属研究機関名：東京大学
部局名：宇宙線研究所
職名：准教授
研究者番号（8桁）：90402768

研究分担者氏名：竹田 敦
ローマ字氏名：TAKEDA, Atsushi
所属研究機関名：東京大学
部局名：宇宙線研究所
職名：助教
研究者番号（8桁）：40401286

(2)研究協力者

研究協力者氏名：金子 克美
ローマ字氏名：KANEKO, Katsumi

研究協力者氏名：井上 睦夫
ローマ字氏名：INOUE, Mutsuo

研究協力者氏名：田阪 茂樹
ローマ字氏名：TASAKA, Shigeki

研究協力者氏名：松原 正也
ローマ字氏名：MATSUBARA, Masaya

研究協力者氏名：碓 隆太
ローマ字氏名：HAZAMA, Ryuta

研究協力者氏名：嶋 達志
ローマ字氏名：SHIMA, Tatsushi

研究協力者氏名：梅原 さおり
ローマ字氏名：UMEHARA, Saori

研究協力者氏名：池田 晴雄
ローマ字氏名：IKEDA, Haruo

研究協力者氏名：Lluís Martí Magro

研究協力者氏名：小林 兼好
ローマ字氏名：KOBAYASHI, Kazuyoshi

研究協力者氏名：中野 佑樹
ローマ字氏名：NAKANO, Yuuki

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。