

令和元年6月21日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03981

研究課題名(和文) 二重ベータ崩壊測定のための高性能フッ化カルシウム結晶開発

研究課題名(英文) Development of high performance CaF₂ crystals 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・准教授

研究者番号：10379282

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円

研究成果の概要(和文)：二重ベータ崩壊核⁴⁸Caのニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊の世界最高感度測定装置の設計構築のためには、放射性不純物の少ない高純度結晶、濃縮したカルシウム48、フッ化カルシウムを用いた熱量検出器の技術が必要である。本研究で、放射性不純物の少ない高純度結晶を製造し、また、濃縮⁴⁸Caの化学形体である塩化カルシウムからCaF₂の製造を行った。さらに、実際にフッ化カルシウム結晶を蛍光熱量検出器としてはじめて使用し、これが二重ベータ崩壊測定に使える見込みを確認した。

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測定は、ニュートリノのマヨラナ粒子性(粒子・反粒子の転換可能性)を検証できる唯一の方法であり、また、ニュートリノの質量の絶対値を観測できる重要な測定である。本研究では、二重ベータ崩壊測定装置開発のために必要な技術開発を行った。これは、現在の二重ベータ崩壊測定の感度を飛躍的に向上した次世代二重ベータ崩壊測定装置構築に有用である。

研究成果の概要(英文)：Study for neutrino-less double beta decay is an important topic. The neutrino-less double beta decay occurs when anti-neutrinos can convert to neutrinos. If this decay can be observed, this would prove that the neutrinos are Majorana particles, and that itself is a remarkable discovery. Now we are developing next generation detector system for measurement of the neutrino-less double beta decay of calcium-48 by using calcium fluoride crystals. In development of the detector system, we need three techniques, which are high purity calcium fluoride crystals, enrichment of calcium-48 and scintillating bolometer. In this research subject, we succeeded in production of the high purity calcium fluoride crystals and studied how to synthesize calcium chloride into calcium fluoride because calcium-48 obtains as calcium chloride. In addition we first succeeded in scintillating bolometer with the calcium fluoride crystal.

研究分野：原子核・素粒子実験

キーワード：二重ベータ崩壊 低バックグラウンド 低放射能

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

粒子（物質）と反粒子（反物質）が質量を介して転換可能であることを証明するためには、ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊の測定が必要である。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された今、ニュートリノの質量の絶対値を観測でき、また、ニュートリノのマヨラナ粒子性（粒子・反粒子の転換可能性）を検証できる唯一の方法であるニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊測定は、国内外で重要な研究として位置付けられている。

現在、結果の出ている注目すべき高感度測定には、 ^{136}Xe を用いた KamLAND-ZEN 実験などがある。これらの実験に使われた二重ベータ崩壊核は、同位体比が 80%以上と高いものを使用している。結果、有効マヨラナニュートリノ質量にして 100meV 程度の上限值を与えている。一方、ニュートリノ振動実験の結果から示唆されているニュートリノ質量で、有力視されている質量領域は、数 meV 領域（順階層構造）と数 10 meV（逆階層構造）である。しかし、現在の次世代検出器開発は、数 meV 領域の感度を持つ検出器開発計画はない。

我々の二重ベータ崩壊測定次世代検出器の感度目標は、ニュートリノが順階層の質量構造を持つ場合に予想されるマヨラナニュートリノ質量にして数 meV である。そのために、我々の実験グループでは、フッ化カルシウム(CaF_2)検出器を用いて、 ^{48}Ca の二重ベータ崩壊の研究を進めてきた。この ^{48}Ca の二重ベータ崩壊の測定の特徴は、 ^{48}Ca の高い Q 値によって、バックグラウンド事象のない測定を行いやすいことである。さらに、 ^{48}Ca 核の優位性を生かすべく、 ^{48}Ca の低い天然同位体比を濃縮技術によってあげる開発を進めている。この濃縮技術によって、二重ベータ崩壊測定で用いる ^{48}Ca 量を増加すると、測定でのバックグラウンドは、ニュートリノを放出する二重ベータ崩壊事象からの寄与になる。この寄与は、良いエネルギー分解能によってのみ、低減することができる。我々は、このバックグラウンド寄与を低減すべく、高エネルギー分解能検出器として、 CaF_2 蛍光熱量検出器の開発も必要である。

2. 研究の目的

本研究では、二重ベータ崩壊核 ^{48}Ca のニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊の世界最高感度測定装置の設計構築のために、高純度（低放射能）結晶を製造する。また、濃縮 ^{48}Ca の化学形態である塩化カルシウムから CaF_2 の製造技術を確認する。また、実際に CaF_2 結晶を二重ベータ崩壊測定に用いるために、 CaF_2 結晶の蛍光熱量検出器としての性能を評価する。結果として、 CaF_2 結晶を用いた二重ベータ崩壊測定が、ニュートリノ質量数 meV を検証できる可能性を評価する。

3. 研究の方法

マヨラナニュートリノ質量数 meV を検証できる CaF_2 結晶を用いた測定装置開発のためには、塩化カルシウムからの CaF_2 合成技術と、高純度化（低放射能化）技術の開発が必要である。また、 CaF_2 結晶の蛍光熱量検出器としての性能評価も必要である。本研究では、それぞれ下記の方法で行う。

1) 塩化カルシウムからの CaF_2 合成技術

濃縮 ^{48}Ca は、塩化カルシウムの化学形態で得られる。一方、通常、 CaF_2 製造は原料として硝酸カルシウムが用いられており、塩化カルシウム水溶液から CaF_2 結晶製造する工業的手法は確立されていない。そこで、塩化カルシウムから、二重ベータ崩壊測定に用いる CaF_2 を製造する必要がある。本研究では、高機能樹脂を用いた泳動法で、濃縮カルシウムの化学形態である塩化カルシウムから、塩素・軽金属を取り除くための技術開発を行なう。また、塩化カルシウムから直接 CaF_2 を合成する手法についてもテストする。

2) 高純度（低放射能）化

二重ベータ崩壊測定が稀崩壊であるため、結晶内部に含まれる微量の放射性不純物ですらバックグラウンドとして寄与する。これら放射性不純物からの α 線や γ 線によるバックグラウンド寄与を低減するために、放射性不純物量を低減することは重要である。要求される放射性不純物量は、ウラン系列・トリウム系列ともにおおよそ $1\mu\text{Bq/kg}$ のレベル以下（これは次項の粒子識別能力にも依存する）である。結晶高純度化のために、原料となる CaF_2 粉末の性能評価を行い、高純度な CaF_2 粉末を用いることで、 CaF_2 溶融品、 CaF_2 結晶の製造を行う。

3) CaF_2 結晶の蛍光熱量検出器

CaF_2 結晶内部に含まれる放射性不純物からのバックグラウンド寄与を低減する方法は、前述の高純度結晶を用いることである。もうひとつの方法は、粒子識別できる検出器を用いることである。 CaF_2 を用いた二重ベータ崩壊測定では、 α 線と β 線（ γ 線）を粒子識別することで、バックグラウンドの主成分である放射性不純物からの α 線と、二重ベータ崩壊事象を識別することができる。また、これらの放射性不純物からの寄与を低減すると、二重ベータ崩壊測定で最後に残るバックグラウンドは、ニュートリノを放出する二重ベータ崩壊事象からの寄与になる。このニュートリノを放出する二重ベータ崩壊からのバックグラウンド寄与は、良いエネルギー分解能によってのみ、低減することができる。そのために、次世代二重ベータ崩壊測定に用いる検出器は、粒子識別ができることと、よいエネ

ルギー分解能を持つことが必要である。本研究では両者を満たす検出器として、これまで蛍光熱量検出器として用いられていない CaF_2 結晶を、蛍光熱量検出器として開発する。

4. 研究成果

塩化カルシウムからの CaF_2 製造として、

ア) 高機能樹脂を用いた泳動法による塩素・軽金属を取り除くテスト

イ) 塩化カルシウムから直接 CaF_2 を合成するテスト

を行った。それぞれについて記載する。

ア) 高機能樹脂を用いた泳動法による塩素・軽金属を取り除くテスト

一般的に、フッ化カルシウムを製造する際に塩化カルシウムを用いないのは、塩素が合成装置を腐食させるためである。すなわち、塩化カルシウムから塩素を取り除くことが重要になる。そのために、泳動システムとイオン交換樹脂を用いて、塩化カルシウムから塩素の分離を行った。イオン交換樹脂には、塩素等を吸着する陰イオン樹脂と、カルシウム等を吸着する陽イオン樹脂があるが、本研究では、不純物の低減効果を見込んで、陽イオン樹脂を用いた。11cm 長さのカラム、10ml の陽イオン交換樹脂を用いた結果、8.3mmol のカルシウムを吸着させ、分離することに成功した (図 1 参照)。カルシウムは、酢酸カルシウム、もしくは、硝酸カルシウムとして回収された。これにより、イオン交換樹脂にカルシウムのみを吸着させることに成功し、また、イオン交換樹脂から確実にカルシウムを脱着させることができることを示した。

したがって、塩素とカルシウム分離に成功し、 CaF_2 合成につなげられることを示した。

イ) 塩化カルシウムから直接 CaF_2 を合成するテスト

塩化カルシウムとフッ化水素酸を混ぜることで、泳動過程を経ずに CaF_2 合成を行うテストを行った。塩化カルシウムとフッ化水素酸を混ぜたあと、5 分攪拌し、得られた粉末を乾燥させたあと、蛍光 X 線分析によって組成評価を行った。結果、0.2%の塩素を含んでいる以外は、99.8%はカルシウムとフッ素で、大部分は予定通り CaF_2 に合成できていることを確認した。微量含んでいる塩素は洗浄方法の改善で低減できると考えられる。したがって、この方法でも CaF_2 合成できることを示した。

以上より、濃縮 ^{48}Ca を生成した際のカルシウムにおいて放射性不純物が十分に少ない場合には、イ) の塩化カルシウムから直接 CaF_2 を合成、放射性不純物が多い場合には、ア) 高機能樹脂を用いた泳動法による塩素取り除きの後 CaF_2 を合成、という段階を踏むことができることを示した。

また、高純度 (低放射能) 化としては、カルシウムサンプルを取り扱う際に空気中のほこり等から放射性不純物を取り込まないためのクリーンブースと、精度よく放射性不純物を測定するシステムを必要とする。そのために、約 10m^2 の広さにヘパフィルタ 5 つを取り付けたクリーンブースを構築した。クリーンブースの内部クリーン度は、パーティクルカウンタを用いる

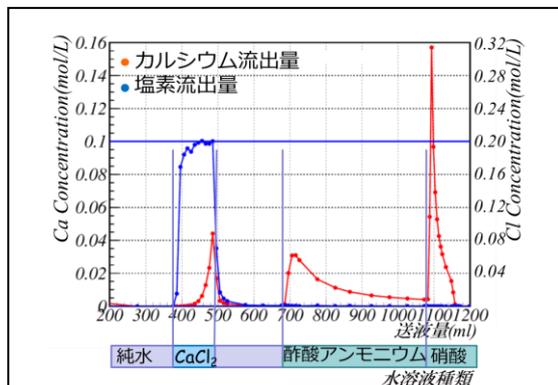


図 1: カルシウムと塩素分離テストのクロマトグラム。イオン交換樹脂と、ダッチャク水溶液として酢酸アンモニウムや硝酸を用いることで、カルシウムと塩素が分離できていることがわかる。

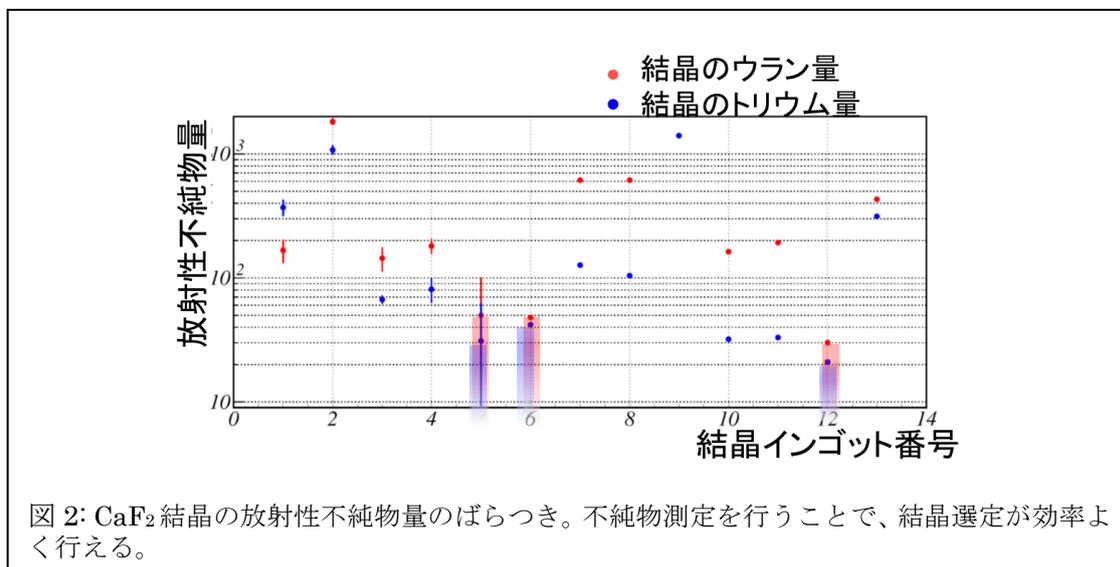


図 2: CaF_2 結晶の放射性不純物量のばらつき。不純物測定を行うことで、結晶選定が効率よく行える。

ことで、常時モニタ出来るようにした。このクリーンブース内部にドラフトを設置することで、クリーン環境での泳動過程（前述の塩素除去、および、ウラン・トリウム除去）のテストを行える環境を構築した。

また、CaF₂結晶内部に含まれる放射性不純物を精度よく測定するシステムを、神岡地下実験室に構築した。これは、CaF₂内部の放射性不純物である、ウラン系列の²¹⁴Bi→²¹⁴Po（半減期164μsec）→²¹⁰Pb、および、トリウム系列の²²⁰Rn→²¹⁶Po（半減期145msec）→²¹²Pbの連続崩壊を測定するためのシステムである。このシステムを用いて、CaF₂結晶の放射性不純物測定を行うとともに、CaF₂熔融品でも放射性不純物測定ができることを示した。これによって、結晶ではないCaF₂の放射性不純物測定感度を2桁改善した。これは、高性能CaF₂原料を選定するために用いるほか、40~60cmという大きな直径のCaF₂インゴットの性能評価に用いる。それは、CaF₂インゴットでは、含まれる放射性不純物量のインゴット内場所によるばらつきは、2-3倍程度と小さいことから可能になる。すなわち、大きな直径のCaF₂インゴットからの小さな結晶の放射性不純物測定を行うことは、CaF₂インゴットの放射性不純物量評価につながる。本研究では、この測定システムを用いて20個のCaF₂インゴットの放射性不純物評価を行った（図2参照）。結果として、必要サイズのCaF₂を購入する前にCaF₂の性能を評価し、高性能のものだけを手に入れるようになった。

CaF₂を用いた蛍光熱量検出器としては、CaF₂(pure)を用いた性能評価を進めた。この蛍光熱量検出器では、蛍光・熱量信号の両者を読み出して粒子識別を実現する。これは、蛍光熱量検出器では、α線・β（γ）線の熱量信号効率が同じだが、蛍光信号効率が異なることを利用している。また、熱量を測定することで、高エネルギー分解能を得られることが期待できる。我々は、CaF₂(pure)結晶、熱検出器としてAuフィルムを用いたテスト測定を行った。本研究で、データを解析した結果、測定される熱信号はPhoton成分、Athermal成分、Thermalized成分の3成分から構成されることが分かった。また、Thermalized成分については、結晶内での事象位置によって時定数に大きな差はないが、Photon成分およびAthermal成分の時定数は結晶内の事象位置に大きく依存することが分かった。これらの位置依存性を補正することで、4.8MeVのα線のエネルギー分解能1.9%(σ)を得た。これは、現在のCaF₂(pure)をシンチレータを用いた測定システムのエネルギー分解能2.4%よりもよい値である。さらに、位置依存性がない場合のエネルギー分解能評価のため、ウラン系列の連続崩壊²²²Rn→²¹⁸Po→²¹⁴Pbからの2種類のα線を用いた。結果として、5.9MeVのα線に対して0.21%のエネルギー分解能を得た。これは、二重ベータ崩壊測定で要求されるエネルギー分解能を十分に満たす値である。

今後これらの結果をさらに発展させ、次世代二重ベータ崩壊測定装置開発につなげていく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 6 件）

1. 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、2018年、1473-1480、査読有、<http://doi.org/10.1080/00223131.2018.1516579>
2. K. Nakajima, S. Umehara(43人中40番目) and the CANDLES collaboration、Background studies of high energy γ rays from (n,γ) reactions in the CANDLES experiment、Astroparticle Physics、100、2018年、54-60、査読有、<http://doi.org/10.1016/j.astropartphys.2018.02.012>
3. W. M. Chan, S. Umehara(25人中3番目) and the CANDLES Collaboration、Development of CANDLES low background HPGe detector and half-life measurement of ^{180m}Ta、AIP Conf. Proc.、1921、2018年、030004 1-6、査読有、<http://doi.org/10.1063/1.5018991>
4. K. Nakajima, S. Umehara(42人中39番目) and the CANDLES collaboration、Performance of updated shielding system in CANDLES、AIP Conf. Proc.、1921、2018年、060003 1-6、査読有、<http://doi.org/10.1063/1.5018999>
5. Umehara S. and the CANDLES collaboration、Search For Neutrino-less Double Beta Decay Of ⁴⁸Ca- Candles -、Proc. Of Science、281、2017年、査読有、<http://doi.org/10.22323/1.281.0246>
6. Shin Okumura, Saori Umehara, 他、Recent Studies on Ca Isotope Separation by Crown-Ether Resin Chromatography、Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences、16、2016年、査読有、11-14、<http://doi.org/10.14494/jnrs.16.11>

〔学会発表〕（計 19 件）

1. 鉄野高之介、CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(131)二重ベータ崩壊のためのCaF₂シンチレーティングボロメーターの開発、物理学会第73回年次大会、2019年
2. 梅原さおり、CANDLESによる二重ベータ崩壊の研究(128)-測定の現状と今後-、物理学会第73回年次大会、2019年
3. Sei Yoshida、Low temperature detector for underground nuclear and particle research、

- Revealing the history of the universe with underground particle and nuclear research 2019 (招待講演) (国際学会)、2019年
4. Xiaolong Li、Development of Scintillating Bolometer with CaF₂ crystal for Neutrinoless Double Beta Decay of Ca-48、Revealing the history of the universe with underground particle and nuclear research 2019 (国際学会)、2019年
 5. 梅原さおり、シンチレータ結晶の内部不純物分析装置、極低放射能技術研究会 (招待講演)、2019年
 6. 梅原さおり、同位体を濃縮したシンチレータ、Scintillator for Medical, Astroparticle and Environmental Radiation Techniques(SMART2018) (招待講演)、2018年
 7. Li, Xiaolong、Development of Scintillating Bolometer for Neutrinoless Double Beta Decay of ⁴⁸Ca、Fifth Joint Meeting of the Nuclear Physics Divisions of the APS and the JPS (国際学会)、2018年
 8. Li, Xiaolong、Development of Scintillating Bolometer for Neutrinoless Double Beta Decay of ⁴⁸Ca、International Workshop on "Double Beta Decay and Underground Science" DBD18 (国際学会)、2018年
 9. 梅原さおり、シンチレータ結晶の内部不純物分析装置、「極低放射能技術」研究会 (招待講演)、2018年
 10. 梅原さおり、Enriched CaF₂ の開発、Scintillator for Medical, Astroparticle and environmental Radiation Technologies(SMART 2017) (招待講演)、2017年
 11. 梅原さおり、CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(120) CANDLES 実験の測定状況、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017年
 12. 梅原さおり、Neutrino-less double beta decay of ⁴⁸Ca studied by CaF₂(pure) scintillators --CANDLES--、XV International Conference on Topics in Astroparticle and Underground Physics(TAUP2017) (国際学会)、2017年
 13. 梅原さおり、CANDLES、CRC タウンミーティング (招待講演)、2017年
 14. S. Umehara、Search For Neutrino-less Double Beta Decay Of ⁴⁸Ca -Candles-、The 26th International Nuclear Physics Conference (INPC2016)、2016年09月11日~2016年09月16日、Adelaide, Australia
 15. 梅原さおり、CANDLES による二重ベータ崩壊の研究(114) - CANDLES 実験の現状、日本物理学会第 72 回年次大会、2017年03月17日~2017年03月20日、大阪
 16. 高橋久士、クラウンエーテル樹脂法による Ca-48 同位体濃縮プラントの概念設計、第 15 回同位体科学研究会、2017年03月10日、東京
 17. 梅原さおり、シンチレータ結晶の内部不純物分析装置、極低放射能技術研究会 (LBGT2017)、2017年02月19日~2017年02月21日、岐阜県飛騨市
 18. 梅原さおり、CANDLES の報告、極低放射能技術研究会 (LBGT2017)、2017年02月19日~2017年02月21日、岐阜県飛騨市
 19. 藤井靖彦、クラウンエーテル樹脂を用いる Ca-48 濃縮法、原子力学会 2016 年秋の大会、2016年09月07日~2016年09月09日、福岡県久留米市

[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

<http://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/~umehara/Public/index.html>

6. 研究組織

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：吉田 斉

ローマ字氏名：Yoshida Sei

研究協力者氏名：竹本 康浩

ローマ字氏名：Takemoto Yasuhiro

研究協力者氏名：黒澤 俊介

ローマ字氏名：Kurosawa Shunsuke

※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。