

研究種目：基盤研究 (C)
研究期間：2006～2008
課題番号：18540297
研究課題名 (和文) 高性能結晶シンチレーターの残留放射能低減による低エネルギー稀崩壊現象の探索
研究課題名 (英文) Search for rare decay phenomena at low energies using scintillating crystals with reduced radioactive background
研究代表者 杉本 章二郎 (SUGIMOTO SHOJIRO) 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・名誉教授 研究者番号：20044753

研究成果の概要：ニュートリノレス・ダブルベータ崩壊や低エネルギー太陽ニュートリノ反応などの稀現象検出をめざしてガドリニウム・シリケート (GS0) 等のシンチレーターの基礎研究を行った。各種試料の残存放射能の比較、試料中の微量不純物 U, Th 系列核種の崩壊連鎖の検出方法、中性子とガンマ線に対する GS0 出力波形の差異、GS0 試料外部の装置から発生する線源の同定と除去法、宇宙線由来の雑音の除去法等を検討すると共に、中型 GS0 結晶を用いてニュートリノレス・ダブルベータ崩壊の新しい下限値の到達可能性について検討を行った。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,100,000	0	1,100,000
2007年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2008年度	900,000	270,000	1,170,000
総計	3,300,000	660,000	3,960,000

研究分野：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：素粒子、ニュートリノ、結晶シンチレーター、ダブルベータ崩壊

1. 研究開始当初の背景

現在、ニュートリノ放出を伴わず 2 個の電子を放出するニュートリノレス・ダブルベータ崩壊 ($0\nu 2\beta$) は ^{76}Ge (SSD) や ^{130}Te を線源物質とした熱量計方式によって、ニュートリノ質量の上限値 0.3～1.5 eV が得られている。一方、別の方式による測定も種々試行・検討されており、一般的には信号領域を雑音から避けるために Q 値の大きな線源物質が試みられている。GS0 結晶を $0\nu 2\beta$ 実験で使用する場合には、 $^{160}\text{Gd} \rightarrow ^{160}\text{Dy} + e^- + e^-$ (1730keV) の崩壊時に出る電子を捕らえることになり、他の線源より比較的小さな Q 値で

の検出を行わなければならないが、GS0 の特徴としては ^{160}Gd の天然含有率は 21.9% と非常に大きく、Q 値の大きい ^{48}Ca (Q= 4.276 MeV) の 0.19% と比べると有利である。また、カドミウム・タンゲステイト (CdWO_4) シンチレーター (発光寿命 14 μs) と比較すると、GS0 の発光寿命は (Ce イオンを 0.5 mol% ドープした場合) 約 60ns と短く、圧倒的に精度の良い時間分解能が得られる。したがって、雑音除去の総合的観点から、 ^{116}Cd (Q 値 2.804MeV, 天然含有率 7.5%, 大発光量の CdWO_4) より優れている。GS0 結晶の $0\nu\beta\beta$ 崩壊への利用や太陽ニュートリノ検出への応用に関する現時点での研究現状は、GS0 自体の残留放射

能低減の具体的開発以前の段階で、GSO の $0\nu 2\beta$ 実験時の環境放射能同定と小さな結晶試料での研究に留まっている。我々は日立化成工業との間でGSO開発の初期の段階から共同研究を行い、最近では高性能ガンマ線カロリメーターをめざした大型GSO結晶の開発を行ってきた。

GSO結晶シンチレーターの開発は日立化成工業で始まり、1989年ごろに至って大きな結晶成長の技術が確立してきた。1990年にはこのGSO結晶の高エネルギー実験での利用をめざして、直径49mm、長さ196mmのGSO結晶に $\pi^-/\mu^-/e^-$ ビームを照射して実験を行い、電磁カロリメーターとしての優れた特性を初めて明らかにした。さらにCeの濃度を多くすることにより、発光時間がより短い信号となることや、 ^{60}Co γ 照射に対する耐放射線性能を明らかにした。一方、GSOの $0\nu 2\beta$ への応用についても小林等が世界で最初に直径5cm、長さ18cm(353cc)のGSOを用いて $0\nu 2\beta$ 実験を行ない、その予備的短期間の実験から $T_{1/2}(0\nu 2\beta) > 3.01 \times 10^{20}\text{y}$ (68% CL)を得て、 $0\nu 2\beta$ 実験の可能性について初めて定量的な情報を示した (Neutrinoless double-beta decay of ^{160}Gd , *Nucl. Phys. A586* (1995) 457-465, M. Kobayashi and S. Kobayashi.). その後、ウクライナのキエフ大学グループからのGSO試料提供要請に協力した結果、Solotvina地下実験施設において、小林等の予備実験の結果を上回る $T_{1/2}(0\nu 2\beta) > 8.2 \times 10^{20}\text{y}$ (90% CL)、および $T_{1/2}(0\nu 2\beta) > 2.3 \times 10^{21}\text{y}$ (68% CL)を得ている。また、RCNPの藤原等は $3.8 \times 3.8 \times 18\text{cm}^3$ のGSOを用いて $T_{1/2}(0\nu 2\beta) > 2.0 \times 10^{20}\text{y}$ (68% CL)という小林等の結果に及ばない結論を得たが、バックグラウンドに関する検討を進めた。

2. 研究の目的

$0\nu 2\beta$ は長年に亘って各地で研究が精力的に行われており、ニュートリノ振動に関する最近の研究の飛躍的な進展とも関連して、マヨナラニュートリノの可能性の可否はニュートリノ質量領域決定への大きなインパクトを与えることになる。さらに、低エネルギー太陽ニュートリノを高精度で検出できれば標準太陽モデルの検証と、太陽からの電子ニュートリノのより詳しい振動情報を得られると期待されている。

これら非常に興味ある現象の検出をめざして、結晶シンチレーターに関する基礎研究を行い、残存放射能に起因するバックグラウンド信号除去に関する試験実験と結晶シンチレーター自体の放射能除去をめざす結晶成長方法の試験実験を行う。本研究で用いる結晶シンチレーターとしては、我々が深く開発にかかわってきたCeイオンをドープしたガ

ドリニウム・シリケート、 $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (GSO)、を基にして結晶シンチレーターの雑音の低減化に取り組み、到達可能な $0\nu 2\beta$ の予想値算出を可能とするとともに、太陽ニュートリノ検出に関しても、測定可能なニュートリノのエネルギー下限値推定の資料を得ることを目標とした。また、ニュートリノ検出や中性子バックグラウンド除去のための新しいシンチレーター開発もめざした。

3. 研究の方法

- (1) 福井大学にてGe検出器や中型GSO結晶を用いて環境放射能の詳細評価をすすめ、発生元を特定するとともに、その対応策を検討する。この開発研究のために、デッドタイムの無い高速波形記録モジュールを利用する。
- (2) KEKの分光測定装置を用いてGSO結晶や新しい各種シンチレーターの基本性能の検査を行う。
- (3) $0\nu 2\beta$ 実験を福井大学にて行い、長期運転に伴う微少バックグラウンドの解明を行う。
- (4) 福井大学での実験結果を基にして、バックグラウンド低減に実効のあるGSO特性の改善方向の検討を行う。

4. 研究成果

- (1) ニュートリノレス・ダブルベータ崩壊 ($^{160}\text{Gd} \rightarrow ^{160}\text{Dy} + e^- + e^-$ (1730 keV))

$0\nu 2\beta$ 事象の観測実験は、ニュートリノの質量を探ることができる数少ない実験の一つである。特に、本研究の対象であるGSO結晶の構成元素のひとつであるGdには、ダブルベータ崩壊を引き起こすとされる原子核 ^{160}Gd を21.86%という高い天然存在比で含んでおり、また、GSO結晶自身が速くて比較的光量の大きなシンチレーターであるという大きな特徴を有している。しかしながら、 ^{160}Gd ダブルベータ崩壊のエネルギーQ値は1730keVと若干低めであるため、環境中のさまざまなバックグラウンドを、効率的に正しく低減させる方法をとる必要がある。

① 各種GSOサンプルの雑音の比較検討

下記4種のGSO結晶について(雑音)バックグラウンドを測定した。

日立製GSO結晶 (3種)

No. 1: 1cm×1cm×1cm (Ce: 0.5%),

No. 2: 1cm×1cm×4cm (Ce: 0.5%),

No. 3: 1cm×1cm×1cm (Ce: 1.0%),

kiev製GSO結晶 (1種)

No. 4: 1cm×1cm×4cm (Ce: 0.5%)

なお、本実験においては外部由来のバックグラウンド低減のため、10cmの鉛と5cmの無酸

素銅が検出器を囲んでいる。また、PMT 由来のバックグラウンドを低減するために低バックグラウンド PMT を使用し、宇宙線による事象に対しては大型プラスチックシンチレーターによる veto をかけた。(図 1 参照)

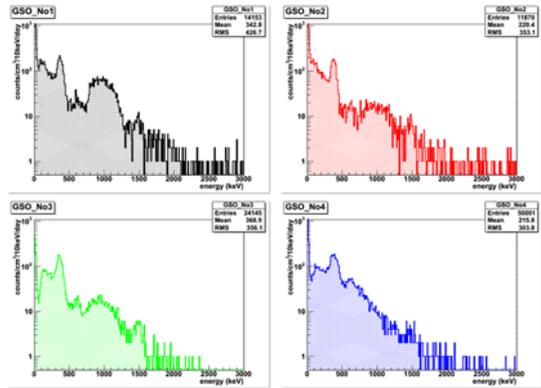


図 1. 上段左 (No. 1), 上段右 (No. 2), 下段左 (No. 3), 下段右 (No. 4)

全ての結晶において、約 400keV に ^{152}Gd の α 崩壊によるピークが観測されている。No. 1, No. 2, No. 3 の日立製 GSO では、約 1000keV に結晶内部の Th 系列, U 系列の崩壊によって構成されるなだらかなピークが観測されているが、No. 4 の kiev 製のものではピークを形成していない。このような製品によるバックグラウンドの違いについては、原料の精製過程の違いや結晶製造工程・使用装置部品の違いを検討中である。なお、現在長期の測定を行っている GSO 結晶 $\phi 5\text{cm} \times 18\text{cm}$ のエネルギースペクトルを図 2 に示しておく。

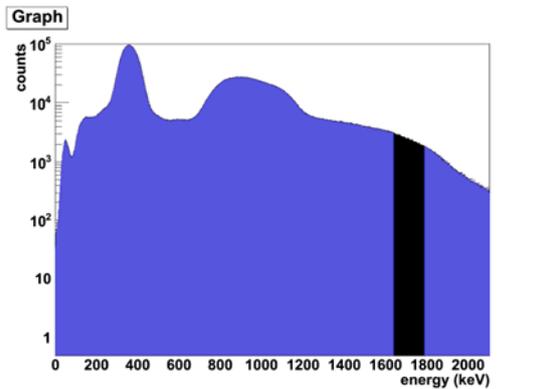


図 2. 中型 GSO 結晶のバックグラウンド

②測定装置から生ずる雑音の同定とその量
光電子増倍管 (PMT) に起因するもの

PMT のガラス含まれる ^{40}K のバックグラウンドを低減させるために、K フリーガラスを用いた PMT を使用した。通常よく用いられる 2" PMT (H1161) と K フリーガラスを使用した 3" PMT (R6233K) からの放射線を Ge 半導体検出器で 4 日間計測し、その測定結果を用いて GSO 結晶からの発光測定予想シミュレ

ーション (Geant4) を行った (図 3 参照)。

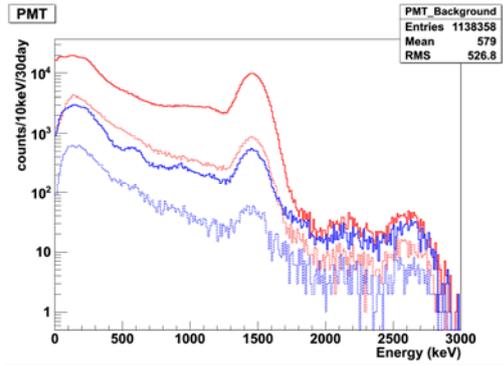


図 3. PMT 由来のバックグラウンド (赤:H1161、青:R6233K、各点線はGSO-PMTの間にアクリル・ライトガイドを挿入)

^{40}K による 1461keV のピークは GSO のエネルギー分解能が 5%(1σ) であるとする、関心領域である 1730keV 付近にも影響してきて、事象数の減少が推定される。次に、通常のガラスを使用した 2" PMT:H1161 と カリウムフリーガラスを使用した 1" PMT:H8643 MOD (R7899-01) を用い、共にライトガイド無し条件で $1\text{cm} \times 1\text{cm} \times 1\text{cm}$ (Ce: 0.5%) の GSO 結晶の読み出しを行った (図 4 参照)。

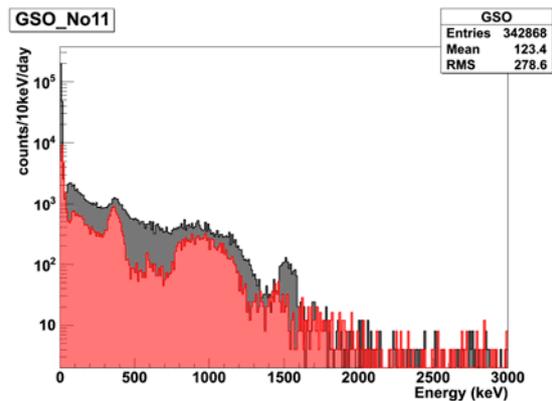


図 4. カリウムフリーガラス PMT の効果 (黒:H1161、赤:H8643MOD)

H1161 で読み出しを行ったエネルギースペクトルに比べ、H8643MOD を使用した方が全体の事象数も少なく、特に 1500keV 付近の ^{40}K によるピーク、及び 1400keV 以下において事象数の減少が見られ、K フリーガラスの効果が確かめられた。

③試料外部由来の雑音発生源の同定とその除去方法の検討

検出器の外部由来のバックグラウンド源として、宇宙線由来の事象について考察した。まず、Geant4 を用いて宇宙線がどのような影響をもたらすかについてシミュレーションを行った。宇宙線の種類とエネルギー及び線

量については expacs を用いた。 μ 粒子の鉛中での崩壊事象を取り除くために、遮蔽鉛の外部および内部にプラスチックシンチレーター(veto)を配置してバックグラウンド除去に努めた結果、シミュレーション結果と実測値のエネルギー分布形状は 500keV 以上の領域でよく一致し、宇宙線由来のバックグラウンド事象の理解を進めることが可能となった。

これにより、 μ 粒子の崩壊による疑似事象を取り除くため、プラスチックシンチレーター信号から 20 μ 秒の veto を設けることで、12% の雑音除去が可能となった。

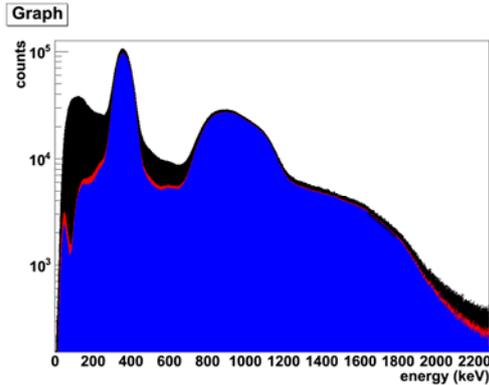


図5. 宇宙線用 veto の効果
黒:veto無し, 赤:遮蔽鉛内部 veto,
青:遮蔽鉛内部 veto+外部 veto.

④試料内部より発生する雑音発生源の同定とその除去法の検討

GSO 結晶内には Th 系列, U 系列の不純物が含まれている。また, ^{160}Gd の $0\nu 2\beta$ の Q 値は 1.73MeV であるが, ^{214}Po の α 崩壊事象 (7.69MeV) はクエンチング効果によって約 4.4 分の 1 の 1.75MeV となりバックグラウンド源となる。 ^{214}Po は ^{214}Bi の β 崩壊 (β max: 3.27keV) によって生成され、半減期 164.3 μ s である。そこで GSO の周りに CsI シンチレーターの veto と無酸素銅 5cm 厚と鉛 10cm 厚のシールドを設置し、LeCroy オシロスコープを用い、波形の積分によるエネルギー

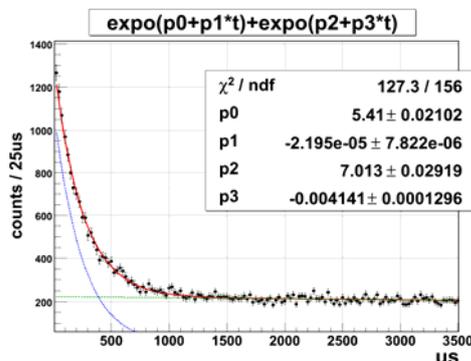


図6. 各事象の時間差

一と各事象間の時間差を取得した。ここではエネルギーが 3300keV 以下の事象が得られてから 1.75MeV \pm 201keV (3 σ 分) の事象が得られたときの事象の時間差のヒストグラムを図6に示す。図中の赤い線は実験によって得られた時間差である。2000 μ sec 以上の頻度がほぼ一定であることから、得られたデータの Fit 関数を2つの指数関数の重ね合わせであると仮定すると、2つの指数関数は青及び緑となる。ここで青の指数関数から求まる半減期は 168 \pm 5 μ s であり、 ^{214}Bi の β 崩壊の文献値 164.3 μ s と誤差の範囲で一致する。この結果より、100 μ 以内のイベントを排除することによって 1730keV でのイベントは減少した。他の線源についてもタギングできるものであれば、バックグラウンドを減少させることが可能である。

⑤中型GSO結晶による $0\nu 2\beta$ の予備的な長期観測の結果

直径 5cm, 長さ 18cm (Ce : 0.5%) の GSO 結晶を用い、長期の観測実験を現在行っている。結晶の周囲は 5cm 厚の無酸素銅と 10cm 厚の鉛によるシールドで囲っており、PMT は R6233K 低バックグラウンド仕様のもを使用している。さらに宇宙線除去用 veto を使用し今迄に 3ヶ月分のデータを取り、その内の1ヶ月分の解析を終えた (T= 2, 236, 226 s)。

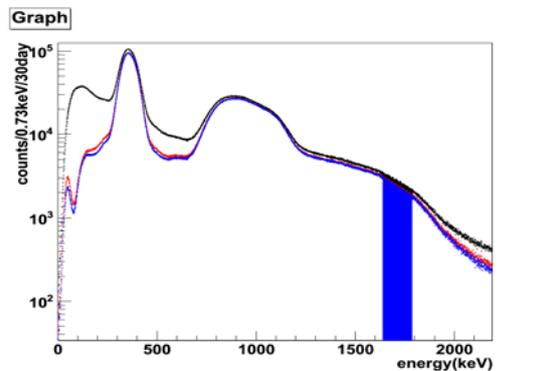


図7. 30日間の観測データ

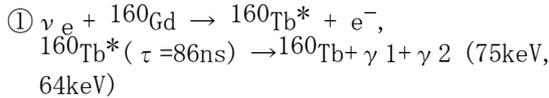
この1ヶ月間の実験結果により、 $0\nu 2\beta$ の半減期を求めてみる。関心領域のバックグラウンド量 $n_{bg}=0.205 \times 10^{-6}$ event/g/s/keV が得られ、以前の値の 1/3 に低減できた。エネルギー分解能 $\Delta E = 7.79\%$ (FWHM @1730 keV) なので、FWHM 内の検出効率 $\epsilon = 0.76$ と、単位質量当たりの ^{160}Gd 核子数 $n(^{160}\text{Gd})=6.19 \times 10^{20} \text{g}^{-1}$ および、結晶質量 $M=2, 371\text{g}$ を用いて、予備実験での $0\nu 2\beta$ 半減期 $T_{1/2}(0\nu 2\beta) > 1.43 \times 10^{20} \text{y}$ を得た。3か月分の全データ解析が進めば以前の我々の結果を越える値が得られるものと期待される。

この半減期は $(M \times T / n_{bg})^{1/2}$ に比例して大きな値を得る事ができるので、より大きな

結晶と測定時間, より低いバックグラウンドを指向し, 今後長時間測定と結晶の数の増設を行う予定である。更に結晶の改善と測定系を地下施設に置いてバックグラウンドを減らす可能性を検討中である。

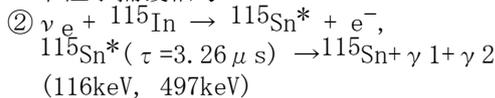
(2) 太陽ニュートリノ測定のための検討

シンチレーターを利用して低エネルギーの太陽ニュートリノを精密に測定するためには下記のような反応を, バックグラウンドから選別して測定しなければならない。



この時に予想されるバックグラウンドとして下記の影響を考えなければならない。バックグラウンド1: ${}^{152}\text{Gd}$ からの 2.1MeV α (GSO 中で 400keV 相当の発光量)。頻度は天然 Gd 1kg あたり 1.6Hz と予想。

バックグラウンド2: ${}^{155}\text{Gd}$ や ${}^{157}\text{Gd}$ からの中性子捕獲信号



現在, GSO を用いた場合の①の反応に及ぼすバックグラウンドの定量的な予想値を, これまでに取得したデータから算出中であり, 結論を得て近日中に公表する予定である。

一方, ②の反応検出をめざして, 後述の(3)に示す新しいシンチレーター $\text{Ba}_3\text{InB}_9\text{O}_{18}$ (BIBO) の開発を行った。

(3) 新しいガラス/微粉末/結晶シンチレーターの開発

①微粉末/結晶 CsPbCl_3 の開発

発光特性を初めて調べた。半導体に属し free exciton 起因の発光は 415 nm にピークがあり非常に速い ($\tau \sim 310$ ps, 図8)。光量は 320 ph/MeV (BGO の 4%)。今後光量と Stokes shift の増加のために適当な不純物の添加、及び微結晶粉末の研究が期待される。

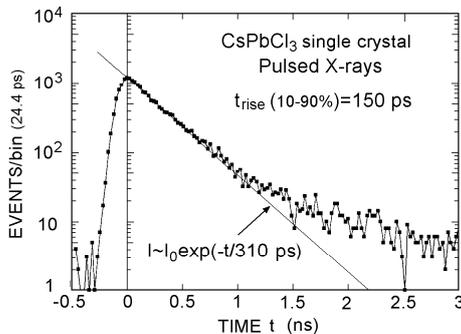


図8. CsPbCl_3 単結晶の減衰特性。

②中性子除去用 Li-B-O ガラス等の開発

中性子の検出効率が大きく応答の速いシンチレーターに $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (LTB): Cu^+ 、 $\text{Li-B-O}:\text{Ce}^{3+}$ ガラスの開発を行った。前者は減衰時定数 τ が 300 ns, $\sim 25 \mu\text{s}$ の成分が主である。後者は光量も LTB より大きく $\tau \sim 50$ ns の速い成分が多いので前者より良い。問題は B_2O_3 を増やすと光量は増えるが弱い潮解性がある。

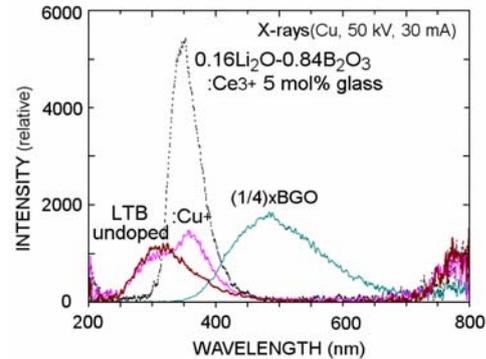


図9. LTB (undoped, $:\text{Cu}^+$) 及び $\text{Li-B-O}:\text{Ce}^{3+}$ ガラスの光量を BGO と比較。

③ $\text{Ba}_3\text{InB}_9\text{O}_{18}$ (BIBO) の開発

BIBO は硼酸塩蛍光体の一つとして最近知られるようになったが In を含むのでニュートリノ検出に適する可能性がある。粉末結晶での評価では光量は BGO の ~ 3 倍大きい。主成分は $\tau \sim$ マイクロ秒とやや遅いがニュートリノ測定には使える可能性がある。単結晶の育成などの開発が求められる。

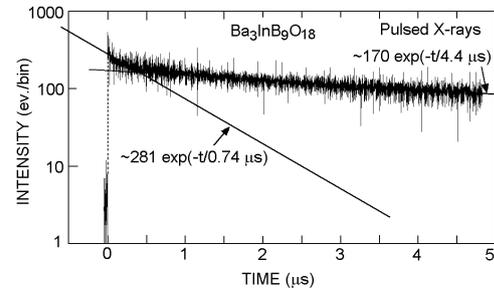


図10. BIBO の減衰特性。

研究成果の纏め

宇宙線を含むバックグラウンド事象を低減させるため, 複数の veto システムを組み合わせさせた結果, バックグラウンドの値として, 従来の約 1/3 の値を得た。

低バックグラウンド PMT による両側読み出しを行い, エネルギー分解能として 7.79% という良好な結果を得た。

CsPbCl_3 , $\text{Li-B-O}:\text{Ce}^{3+}$ ガラス, $\text{Ba}_3\text{InB}_9\text{O}_{18}$ (BIBO) 等の新しいシンチレーターを開発した。

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 7件)

- ① J. Fu, M. Kobayashi, S. Sugimoto, Scintillation from Eu^{2+} in nanocrystallized glass, Journal of the American Ceramic Society (査読有), (2009)出版予定
- ② J. Fu, M. Kobayashi, and J.M. Parker, Terbium-activated heavy scintillating glasses, Journal of Luminescence (査読有), 128(2008)99-104
- ③ J. Fu, M. Kobayashi, S. Sugimoto and J.M. Parker, Eu^{3+} -activated heavy scintillating glasses, Materials Research Bulletin (査読有), 43(2008)1502-1508
- ④ M. Kobayashi(1番目), S. Sugimoto(3番目), Y. Tamagawa(4番目), 他5名, Scintillation characteristics of CsPbCl_3 single crystals, Nuclear Instruments and Methods (査読有), A592(2008)369-373
- ⑤ 薄 善行, 小林 正明(9番目), 杉本 章二郎(10番目), 他7名, LuAG単結晶の作製とシンチレータ特性, 日本結晶成長学会誌(査読有), 35-2(2008)32-38
- ⑥ K. Kamada, M. Kobayashi(9番目), S. Sugimoto(10番目) 他8名, Scintillation properties of 2-inch-diameter $\text{Pr}:\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ single crystal, Nuclear Science Symposium Conference Record (査読有), 2007. NSS apos:07. IEEE, Volume 4, Issue, Oct. 26 2007-Nov. 3 2007, P. 2480- 2484,
- ⑦ Y. Tamagawa(1番目), M. Kobayashi(3番目), S. Sugimoto(8番目), 他9名, Performance of connected GSO bars, Nuclear Instruments and Methods (査読有), A562(2006)120-126

[学会発表] (計 9件)

- ① 石川 裕也, 新規シンチレータ $\text{Ba}_2\text{InB}_9\text{O}_{18}$ の作成と評価, 平成20年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2008年11月29日, 福井大学
- ② 下川智史, 放射線計測のための波形データ測定-FADCリアルタイム処理の

試みー, 平成20年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2008年11月29日, 福井大学

- ③ 大河内豪蔵, GSO を用いた中性子検出器の開発, 平成19年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2007年12月1日, 富山県立大学
- ④ 竹内博則, CsPbCl_3 のシンチレーション光の分光測定, 平成19年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2007年12月1日, 富山県立大学
- ⑤ 佐藤健, ダブル β 崩壊観測実験のためのGSO結晶での粒子弁別, 平成19年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2007年12月1日, 富山県立大学
- ⑥ 林長宏, $\beta\beta$ 崩壊実験のための中性子バックグラウンド解析, 平成19年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2007年12月1日, 富山県立大学
- ⑦ Kei Kamada, Scintillation properties of 2-inch-diameter $\text{Pr}:\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ single crystal, 2007 Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conf., Nov. 2, 2007, Honolulu, USA
- ⑧ 犬飼裕介, GSO結晶を用いたダブル β 崩壊実験のためのバックグラウンド解析, 日本物理学会第62回年次大会, 2007年9月21日, 北海道大学
- ⑨ 鈴木茂仁, ダブル崩壊観測のためのGSO (Gd_2SiO_5) 検出器の開発, 平成18年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2006年12月2日, 金沢大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

杉本 章二郎 (SUGIMOTO SHOJIRO)
大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・名誉教授
研究者番号: 20044753

(2) 研究分担者

(2006~2007年度)

小林 正明 (KOBAYASHI MASAOKI)
大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・名誉教授
研究者番号: 40013388

(2006~2008年度)

玉川 洋一 (TAMAGAWA YOICHI)
福井大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：40236732

(3) 連携研究者

(2008年度のみ)

小林 正明 (KOBAYASHI MASA AKI)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速
器研究機構・名誉教授

研究者番号：40013388