

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：16101
研究種目：基盤研究(B) (一般)
研究期間：2012～2015
課題番号：24340055
研究課題名(和文) KamLAND - PICOによる宇宙暗黒物質探索

研究課題名(英文) KamLAND-PICO dark matter search project

研究代表者

伏見 賢一 (FUSHIMI, KENICHI)

徳島大学・大学院ソシオ・アーツ・アンド・サイエンス研究部・教授

研究者番号：90274191

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,800,000円

研究成果の概要(和文)：宇宙暗黒物質探索実験に使用するタリウム添加ヨウ化ナトリウム(NaI(Tl))を開発した。実験に先立って、結晶に含まれる放射性不純物の濃度を調べたところ、目標の値に比べて1,000倍もの高濃度な汚染を確認した。そこでNaI(Tl)結晶の純度を向上させることに集中し、大容量結晶の開発を進めることにした。NaI(Tl)結晶に含まれる放射性不純物の濃度を低減させるために坩堝を改良し、NaI粉末の純度を化学処理によって向上させ、効果的に純度を向上させることに成功した。226Raの濃度を約10 μ Bq/kgまで低減させることに成功し、NaI(Tl)が宇宙暗黒物質探索実験に十分使用できることを確認した。

研究成果の概要(英文)：We developed highly radiopure NaI(Tl) scintillator to search for dark matter. At the beginning of the research, a large amount of impurity which was as large as 1000 times of the aiming concentration was found. Consequently, we decided to focus on the purification of NaI(Tl) crystal. The material of crucible was improved and chemical processing to reduce radioactive impurities: the concentration of radioactive impurities in NaI(Tl) scintillator was successfully reduced. The final result of the concentration was, for example, about 10 μ Bq/kg for 226Ra. The high purity NaI(Tl) is now ready to use for dark matter search.

研究分野：素粒子・原子核・宇宙線・宇宙物理

キーワード：宇宙暗黒物質探索 超高純度結晶 極低バックグラウンド技術

1. 研究開始当初の背景

宇宙暗黒物質(DM)は、宇宙物理学はもちろん素粒子物理学や原子核物理学にとっても重要なテーマである。約80年前にDMの存在に対する示唆が与えられて以降、多くの実験的、理論的研究が行われてきた。

DMの候補は様々な素粒子モデルによって提案されている。なかでも有力な候補は物質と弱い相互作用をする素粒子である。現在の素粒子モデルをより完全なものにすると考えられている超対称性理論では、原子核との相互作用断面積は 10^{-41} cm^2 以下、質量は数 GeV/c^2 以上の素粒子が提案されている。これらの候補はWIMPs (Weakly Interacting Massive Particles) と総称されている。

世界の多数のグループがWIMPsの発見を目指して様々な方法で研究を進めている。特に2010年以降の進展は注目すべき状況である。

DAMA、CoGeNT および、CRESST の各グループはWIMPsに起因すると考えられる信号を捉えたと主張しているが、互いの主張する領域は一致していない。また、Xenon100やCDMS グループの結果は上記のグループが主張する領域の可能性を排除するなど、状況は混乱の様相を呈している。

2. 研究の目的

本研究では、WIMPsの相互作用を分析的に調べることができる装置を用いて混乱している現状を打開することを目的とする。

検出器本体にはタリウム添加ヨウ化ナトリウム(NaI(Tl))を使用する。NaI(Tl)は次のような特性があり、WIMPs探索に有利である。

- (1) NaI(Tl)に含まれる ^{23}Na と ^{127}I はいずれもWIMPs探索に用いる標的核として理論的な検討が詳細に行われている原子核である。 ^{23}Na は軽いWIMPsに、 ^{127}I は重いWIMPsにそれぞれ感度が高いため候補を幅広く探索することができる。
- (2) 古くから知られている検出器の結晶であ

るため、特性が良く知られている。

WIMPs探索にあたって未知の要因を考慮する必要がない。

- (3) 原料を安価に入手することができるため、大容量の検出器を容易に開発することができる。

WIMPsを探索するための検出器には積層型NaI(Tl)を用い、低バックグラウンド環境のアクティブシールドとしてKamLANDを用いる。高感度の積層型NaI(Tl)はこれまでPICO-LON (Planar Inorganic Crystal Observatory for LOw-background Neutralino) として開発しており、高エネルギー分解能と低エネルギー閾値の測定が可能であることを示している。に厚さ0.1 cm、面積 $15 \text{ cm} \times 15 \text{ cm}$ のNaI(Tl)薄型装置による性能評価実験ではエネルギー分解能 $20\% @ 60 \text{ keV}$ (半値全幅)、エネルギー閾値 2 keV と、宇宙暗黒物質探索実験に必要なとされる性能を満たしていることを確認した。(学会発表⑳、㉑)

KamLANDは反ニュートリノのニュートリノ振動を検出する高感度の放射線検出器であり、宇宙暗黒物質を探索するためのアクティブシールドとして最適である。二つのユニークな検出器を組み合わせたKamLAND-PICO計画により、DMの検出を目指す。

3. 研究の方法

宇宙暗黒物質探索実験に必要な感度を確保するために(NaI(Tl))に含まれる放射性不純物の濃度を低減する。世界でNaI(Tl)を製造している業者は限られているが、超高純度NaI(Tl)の製造について実績のあるI.S.C.Lab.でNaI(Tl)結晶の精製および結晶成長を依頼した。

具体的な純度の目標値を表1に示す。表1に示すとおり、本研究で努力すべきは ^{210}Pb の低減である。現在までに申請者グループが開発したNaI(Tl)結晶には濃度 6 mBq/kg の ^{210}Pb が含まれている。

表 1 : NaI(Tl)に含まれる放射性不純物の目標

放射性不純物	目標	これまでの実績	世界の現状
ウラン系列	<1 ppt	1.07 ppt	1 ppt
トリウム系列	<5 ppt	0.6 ppt	1 ppt
²¹⁰ Pb	0.1 mBq/kg	6 mBq/kg	0.01 mBq/kg
natK	0.1 ppm	0.2 ppm	0.1 ppm

²¹⁰Pb は空気中に含まれる²²²Rn が結晶粉末の乾燥時に混入し、崩壊して半減期が長い²¹⁰Pb として蓄積されることがこれまでの研究によって明らかになった。

そこで、本研究ではNaI の処理には空気の管理を十分に施した施設で処理を行った。

I.S.C. Lab.の技術者(今川恭四郎・研究協力者)と裕(研究連携者)が協力して精製システムを整備し、直径3 インチ、長さ3 インチの円筒形NaI(Tl) 検出器を作成して放射性不純物の濃度を測定した。放射性不純物のうち、

線を放出するウラン系列、トリウム系列及び²¹⁰Pb の子孫核はNaI(Tl) シンチレーターの蛍光信号波形が放射線の種類によって異なることを利用した波形弁別法(Pulse Shape Discrimination; PSD) によって測定した。

4 . 研究成果

放射性不純物の濃度は作業環境のほかに結晶成長に使用する坩堝の材質に大きく依存することが確認された。従って、本研究計画ではNaI(Tl)の純度向上に集中し、大容量の結晶を製造することで感度を向上させることを最終目標とし、方針を修正し、NaI粉末の純化とともに坩堝の純度向上を並行して行った。

図1に本研究によって純度を向上させた結晶を用いた放射性不純物計測の結果を示す。

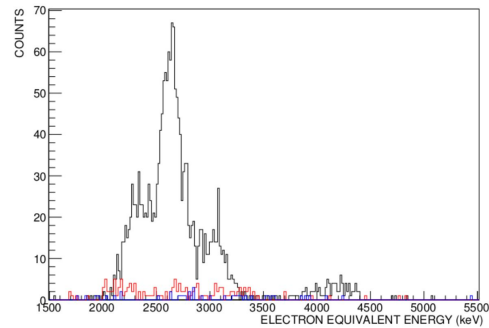


図 1 : NaI(Tl)検出器に含まれる放射性不純物の除去効果。論文 に掲載の図。

図1の横軸は電子換算のエネルギー、縦軸は一日に計測されたアルファ線の計数値を表す。黒実線のスペクトルは最初に製造された結晶(Ingots #16) による測定結果で2600 keV付近に²¹⁰Poに起因するアルファ線の強いピーク、その両側にウラン系列に起因するアルファ線のピークがみられる。平成24年度から25年度にかけて坩堝の純度を向上させたいえ鉛を除去するイオン交換樹脂を用いて²¹⁰Pbの除去を試みた。完成した結晶(Ingots #20)赤で示すスペクトルのように事象数が激減した。赤に示すエネルギースペクトルを分析すると²²⁶Raおよび²¹⁰Poに起因するアルファ線がそれぞれ108 μBq/kg、58 μBq/kg含まれていることが明らかになった。(発表論文)

更に純度を向上させるために平成26年度から27年度にかけてラジウムを吸着させる樹脂を調査し、最適化した方法で結晶を成長させた。完成した結晶(Ingots #26)による測定結果は図1の青色のスペクトルとなり、²²⁶Raおよび²¹⁰Poの濃度はそれぞれ57 μBq/kgおよび29 μBq/kgまで低減させることに成功した。

Ingots #26の製造時には検出器に使用する材料に含まれる放射性不純物の濃度が課題になった。結晶自体の純度は十分に向上したものの、NaI(Tl)の唯一の難点である潮解を防ぐために必要な容器に放射性不純物汚染が見つかった。Kozlovおよび竹本、池田らによるGeによるスクリーニング、シミュレーションによって放射性不純物の汚染源を特定し、平成

27年度末にIngot #26を改造した検出器が完成した。その結果、周辺材料からのバックグラウンドは1/10以下に減衰したが、結晶内部にカリウムの汚染が明らかになった。シミュレーションによる解析の結果、その濃度は2.66 ppmと目標値の100倍に達していたため、カリウムの混入経路を詳細に検討し、製造方法及び増埧の取り扱いを改良した。

平成27年度末に完成したIngot #37では、カリウムによる顕著なピークは見られなくなり、製造工程の改良による効果がみられた。最新のIngot #37は平成28年3月にデータ収集を開始し、不純物濃度がこれまでで最も低い値になっていることを確認した。表2に本研究によって開発されたNaI(Tl)結晶に含まれる放射性不純物の濃度を示す。

表2：NaI(Tl)結晶中の放射性不純物濃度の推移。赤字はIngot #37の速報値。

Ingot	²²⁶ Ra (μBq/kg)	²¹⁰ Pb (μBq/kg)	Th 系列 (μBq/kg)	^{nat} K (ppb)
23	108 ± 18	58 ± 26	13 ± 8	
26	57 ± 4	29 ± 7	1.5 ± 1.9	2600
37	~12	<1	~0	<260
DAMA/ LIBRA [1]	21.7 ± 1.1	24.2 ± 1.6	2~30	<20
ANaIs [2]	10 ± 2	600~700	3.2 ± 1.2	35~40

NaI(Tl)結晶に含まれる放射性不純物の濃度が十分に下がったため、これを無酸素銅のハウジングに入れて低バックグラウンド測定を行った結果、20 keV付近のエネルギー領域における計数率は5 /day/keV/kgとなり、簡易なシールド条件ながらDM-ICEよりも低いバックグラウンド値を得ることに成功した。

今後はKamLAND内の極低バックグラウンド環境下に設置すること、および大容量化を推進するための設計を行い、250 kgのNaI(Tl)検出器を用いた宇宙暗黒物質信号の探索を行う予定である。

[1] R.Bernabei et al., NIM A592 (2008)297.

[2] J.Amare et al., arXiv:1512.04239.v1.

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 9件)すべて査読あり

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, S.Yoshida, “Dark matter search project PICO-LON”, Journal of Physics: Conference Series (2016) 印刷中

K.Fushimi, H.Ejiri, R.Hazama, H.Ikeda, K.Inoue, K.Imagawa, G.Kanzaki, A.Kozlov, R.Orito, T.Shima, Y.Takemoto, Y.Teraoka, S.Umehara and S.Yoshida, “High purity NaI(Tl) scintillator to search for dark matter”, JPS conference proceedings (2016) 印刷中

K.Fushimi, Y.Awatani, H.Ejiri, R.Hazama, R.Sugawara, H.Ikeda, K.Imagawa, K.Inoue, A.Kozlov, R.Orito, T.Shima and K.Yasuda, “KamLAND-PICO dark matter search project”, Physics Procedia 61 (2015) 67-73, doi: 10.1016/j.phpro.2014.12.012

K.Fushimi, Y.Awatani, H.Ejiri, R.Hazama, H.Ikeda, K.Imagawa, K.Inoue, A.Kozlov, R.Orito, T.Shima, R.Sugawara and K.Yasuda, “KamLAND-PICO project to search for dark matter”, Proceedings of the 26th Workshop on "Radiation Detectors and Their Uses 2014-11 (2014) 23-33, <http://ccdb5fs.kek.jp/tiff/2014/1425/1425011.pdf>

K.Fushimi, S.Nakayama, R.Orito, R.Sugawara, Y.Awatani, H.Ejiri, R.Hazama, T.Shima, K.Inoue, A.Ikeda and A.Kozlov, “PICO-LON Dark Matter Search”, Journal

of Physics: Conference Series 469 (2013)
12011, doi:10.1088/1742-6596/469/1/012011

〔学会発表〕(計 31 件)

碓隆太, “高純度 NaI(Tl)シンチレーターによる宇宙暗黒物質の探索”, 第 11 回 Eichrom Technologies 社製品ユーザーズセミナー, 2016 年 4 月 19 日, KKR ホテル東京 (東京都千代田区), 招待講演

伏見賢一, “PICO-LON 報告: 高感度 NaI(Tl)検出器による宇宙暗黒物質探索の現状”, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 20 日, 東北学院大学(宮城県仙台市)

伏見賢一, “PICO-LON の現状報告”, 極低放射能技術研究会(LBGT2016), 2016 年 3 月 14 日, 徳島大学(徳島県徳島市), 招待講演

伏見賢一, “High purity NaI(Tl) scintillator to search for dark matter”, First International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses (ISR2016), 2016 年 1 月 19 日, 高エネルギー加速器研究機構 (茨城県つくば市)

伏見賢一, “PICO-LON 報告: NaI(Tl)検出器の純度測定と感度評価について”, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 28 日, 大阪市立大学 (大阪府大阪市)

伏見賢一, “PICO-LON dark matter search project”, International Conference on Topics in Astroparticle and Underground Physics (TAUP 2015), 2015 年 9 月 9 日, トリノ (イタリア)

伏見賢一, “PICO-LON 計画 ~ 世界の NaI(Tl)で宇宙暗黒物質探索 ~”, 応用物理学会放射線分科会 夏の学校, 2015 年 8 月 6 日, 桂浜荘 (高知県高知市), 招待講演

伏見賢一, “PICO-LON による宇宙暗黒物質探索”, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 23 日, 早稲田大学 (東京都新宿区)

竹本康浩, “PICO-LON 用高純度 NaI(Tl)

検出器をもちいた低 BG 測定”, 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 23 日, 早稲田大学 (東京都新宿区)

伏見賢一, “NaI(Tl)の高純度化について”, 極低バックグラウンド放射能技術研究会 (LBGT2015), 2015 年 3 月 10 日, 兵庫県淡路夢舞台国際会議場 (兵庫県淡路市), 招待講演

伏見賢一, “PICO-LON の課題について”, 極低バックグラウンド放射能技術研究会 (LBGT2015), 2015 年 3 月 9 日, 兵庫県淡路夢舞台国際会議場 (兵庫県淡路市), 招待講演

碓隆太, “ダークマターの直接探索実験の現状”, 研究会「宇宙核物理実験の現状と将来», 2014 年 8 月 7 日, 大阪大学(大阪府吹田市), 招待講演

伏見賢一, “PICO-LON による宇宙暗黒物質探索 ~ NaI(Tl)結晶の高純度化 ~”, 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 29 日, 東海大学湘南キャンパス (神奈川県平塚市)

伏見賢一, “PICO-LON による宇宙暗黒物質探索 ~ NaI(Tl)の純度測定経過と将来計画”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 20 日, 高知大学 (高知県高知市)

伏見賢一, “KamLAND-PICO dark matter search project”, 13th International Conference on Topics in Astroparticle and Underground Physics (TAUP2013), 2013 年 9 月 8 日, Asilomar Monterey California (米国)

伏見賢一, “PICO-LON dark matter search”, CYGNUS 2013: 4th Workshop on Directional Detection of Dark Matter, 2013 年 6 月 12 日, オークスカナル パークホテル (富山県富山市), (招待講演)

伏見賢一, “PICO-LON project for dark matter search”, 極低バックグラウンド素粒子原子核研究懇談会, 2013 年 4 月 23 日, 富山商工会議所 (富山県富山市), (招待講演)

伏見賢一, “PICO-LON による宇宙暗黒物質探索 (NaI(Tl)検出器の開発報告)”, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 29 日, 広島大学 (広島県東広島市)

伏見賢一, “PICO-LON による宇宙暗黒物質探索”, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 11 日, 京都産業大学 (京都府京都市)

伏見賢一, “Dark Matter search with PICO-LON”, The 4th International Symposium on Neutrino and Dark Matter, 2012 年 6 月 12 日, 東大寺金鐘ホール(奈良県奈良市)

② 伏見賢一, “Dark Matter Search with Multi-layer NaI Crystals PICO-LON”, 2012 年 6 月 8 日, The XXV International Conference on Neutrino Physics and Astrophysics NEUTRINO 2012, 京都テルサ(京都府京都市)

[図書](計 1 件)

伏見賢一, 『宇宙物理学入門～現代宇宙物理学の A から～』, 大学教育出版, 2015 年, 173 ページ

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

伏見 賢一 (FUSHIMI, Ken-Ichi)
徳島大学・大学院ソシオ・アーツ・アンド・サイエンス研究部・教授
研究者番号: 90274191

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

嶋 達志 (SHIMA, Tatsushi)
大阪大学・核物理研究センター・准教授
研究者番号: 10222035

裕 隆太 (HAZAMA, Ryuuta)
大阪産業大学・人間環境学部・准教授
研究者番号: 00379299

折戸 玲子 (ORITO, Reiko)
徳島大学大学院・大学院ソシオ・アーツ・アンド・サイエンス研究部・講師
研究者番号: 80579417

井上 邦雄 (INOUE, Kunio)
東北大学・ニュートリノ科学研究センター・教授
研究者番号: 10242166

池田 晴雄 (IKEDA, Haruo)
東北大学・ニュートリノ科学研究センター・助教
研究者番号: 90400233

竹本 康浩 (TAKEMOTO, Yasuhiro)
大阪大学・核物理研究センター・特任助教
研究者番号: 40732186

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

吉田 斉 (Yoshida, Sei)
大阪大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号: 60400230

コズロフ アレキサンドレ (KOZLOV, Alexandre)
東京大学・数物連携宇宙研究機構・研究員
研究者番号: 30528063