

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01222

研究課題名(和文)大発光量無機シンチレータで目指す宇宙史研究

研究課題名(英文)Study of the history of the Universe using high-light-yield scintillators

研究代表者

飯田 崇史(Iida, Takashi)

筑波大学・数理解物質系・助教

研究者番号：40722905

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではヨウ化カルシウム(CaI<sub>2</sub>)シンチレータを実用化し、将来的にこれを用いた高感度の暗黒物質探索・二重ベータ崩壊探索実験を立ち上げることを目指している。実験の高感度化には、一般的に「低閾値・高分解能、大型化、低バックグラウンド(BG)」の3本柱が重要となる。我々はCaI<sub>2</sub>結晶作成に成功し、NaI(Tl)の2.7倍という大発光量を得て、低閾値・高分解能が達成可能なことを示した。大型化に関してはCaI<sub>2</sub>専用の炉を立ち上げ結晶育成速度を加速し、2インチサイズ結晶を開発した。また波形弁別法による低BG技術の基礎研究を行い、CaI<sub>2</sub>の非常に高い粒子識別能を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、暗黒物質探索や二重ベータ崩壊研究といった基礎物理の研究に利用可能な大発光量のCaI<sub>2</sub>シンチレータ開発に取り組んだ。これらの研究を行うためには、低閾値・高分解能、大型、低バックグラウンドの検出器が必要となる。本研究により、大型結晶の育成と低バックグラウンド技術の確立に成功した。この新たなシンチレータは、我々の目指す基礎物理実験のみならず、エネルギーや医療といった実用的な分野でも利用できる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：We have developed a calcium iodide (CaI<sub>2</sub>) scintillator and aim to launch the sensitive dark matter search and double beta decay search experiment using it in the future. In order to increase the sensitivity of experiments, three pillars are generally important: low threshold and high resolution, large size, and low background (BG). We have succeeded in producing CaI<sub>2</sub> crystals with a luminous intensity 2.7 times higher than that of NaI(Tl), demonstrating that low threshold and high resolution can be achieved. As for the larger size crystal, a dedicated CaI<sub>2</sub> furnace was set up, and 2-inch size crystals were developed. We also conducted basic research on low BG technology using waveform discrimination method, and demonstrated very high particle discrimination ability of CaI<sub>2</sub>.

研究分野：素粒子物理学実験

キーワード：ニュートリノ 暗黒物質 無機シンチレータ

## 1. 研究開始当初の背景

宇宙の歴史をひも解く上で欠かせない問題として、暗黒物質の正体とは何か？、何故宇宙は物質のみで出来ているのか？などが存在する。これら宇宙史の問題を解決するため、世界中で「暗黒物質（DM）直接探索」や「ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊（ $0\nu\beta\beta$ ）探索」が行なわれているが発見には至っていない。これらの研究を行うためには、低閾値・高分解能、大型、低バックグラウンド（BG）の検出器が必要となる。

・**暗黒物質**：我々の宇宙を構成するエネルギーの27%が未知なるDMで占められており、これは目に見える通常の物質の約5倍に相当する膨大なもので、DMを知ることは宇宙形成の歴史を理解するのに極めて重要である。またDMの正体は理論的に存在が予想されている超対称性粒子ではないか、というのが有力な説の一つであり、観測されれば現在の素粒子標準理論を越えた新理論構築の突破口となり得る。DMはエネルギーが高くなるとその数は指数関数的に減少する。そのため、高感度探索のためには低閾値が重要な鍵となる。

・**二重ベータ崩壊**： $0\nu\beta\beta$ の観測は、素粒子ニュートリノ（ $\nu$ ）の本質に迫り物質の起源解明に関わるため、現代物理学において極めて重要な研究であると位置づけられる。もし発見されれば現在の宇宙が反物質でなく、物質で形成されている事実を理論的に説明することが出来る。また、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊率は $\nu$ 有効質量二乗に比例するため、半減期を測定すれば、素粒子標準理論の粒子で唯一未決定の $\nu$ 質量も測定可能である。 $0\nu\beta\beta$ 測定にはニュートリノを放出する二重ベータ崩壊（ $2\nu\beta\beta$ ）が究極のBGとなるが、それを防ぐためにはエネルギー分解能を高める必要がある。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、現在開発中の発光量大きいCaI<sub>2</sub>シンチレータを用いた高感度な宇宙史研究に向けた、性能評価と基盤技術開発を行うことである。我々はこれまでにハーフインチCaI<sub>2</sub>結晶作成に成功しており、実際に光電子増倍管（PMT）と組み合わせて、107,000 [ph./MeV]とNaI(Tl)比で2.7倍の大発光量を得た。それによりCaI<sub>2</sub>によって低閾値・高分解能が可能であることを示してきた[1]。本研究では、残る大型化と低BG化に取り組んだ。

[1] K. Kamada, T. Iida et al., Ceram. Int. Vol.43 Suppl.1 (2017) Pages S423-427

### (1) 結晶の大型化

開発したCaI<sub>2</sub>結晶育成技術を軸として、大型実験立ち上げに不可欠な結晶の大型化・加工技術を確立する。一般的には $\gamma$ 線の減衰長やPMTとの組み合わせ等から2インチサイズが大型化の目安となる。本研究において2インチCaI<sub>2</sub>結晶の安定供給を目指す。

### (2) 低バックグラウンド技術の確立

DM等の極稀な事象の探索では、信号の原子核反跳事象とBGのガンマ線事象を分離することが低BGの鍵となる。無機シンチレータでは、異なる入射粒子に対して信号波形が変わる性質を利用して粒子の種類を識別することが可能である。本研究においてCaI<sub>2</sub>の波形弁別による低BG手法を確立する。

## 3. 研究の方法

### (1) 結晶の大型化

#### ① CaI<sub>2</sub>専用炉の立ち上げ

CaI<sub>2</sub>は蒸発を防ぐために、るつぼを封じ切る特殊な製法を必要とするが、当初は共用の炉を使用しており使える時間が限られる上に封じ切りのセットアップに時間がかかり非効率的である。本研究において封じ切りのCaI<sub>2</sub>専用の炉を立ち上げ、研究を一気に加速させる。本研究予算を用いて右写真（図1）のクライオポンプ式封入炉を購入した。それにより石英管内に原料投入後、高真空条件でベーキングの後高純度Arガスを導入し、ガスバーナーによりガラス管の封じ切りが可能で、封じ切り専用の炉を金属材料研究所に立ち上げた。

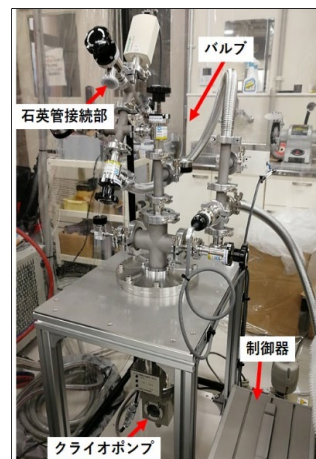


図1: CaI<sub>2</sub>専用炉の一部

## ② Ca(Br,I)の組成調査

CaI<sub>2</sub>結晶は、へき開性が強く有効な加工技術が存在せず、結晶を育成しても実用化が難しいとされてきた。我々は上記で立ち上げた炉を用いて Eu: Ca(Br<sub>2-x</sub>, I<sub>x</sub>)の組成を変えた結晶を何種類か作成した。結晶の組成を変えることによって、へき開性を弱めて加工性の良い結晶を開発することを検討した。

### (2) 低バックグラウンド技術の確立

放射線源を用いて粒子種と波形の関係を調査する。ブリッジマン法で作成した CaI<sub>2</sub>結晶(図2左上)を、5mm×5mm×1mm程度に切り出し、光電子増倍管(Hamamatsu R7600U-200)と組み合わせたセットアップを、湿度3%以下に保持されたドライルーム内に用意した(図2左下)。これに上から<sup>241</sup>Am、<sup>137</sup>Csの放射線源を用いて、アルファ線、ガンマ線を照射した。光電子増倍管からの信号波形は0.4GHzのサンプリングレートで波形デジタイザを用いて、それぞれ1万事象ずつ取得した。得られた信号波形のサンプルを図2右に示す。

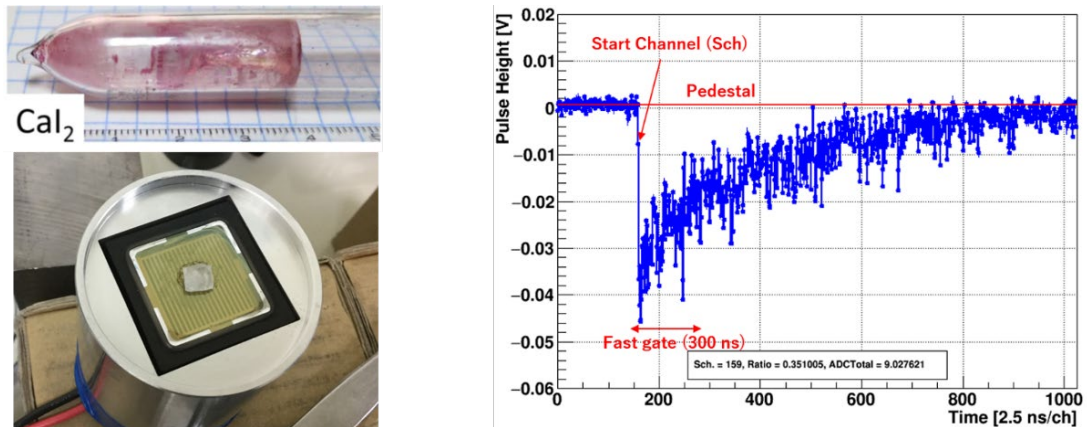


図2: (左上) 作製したハーフインチ CaI<sub>2</sub>結晶。(左下) 切り出した結晶を光電増倍管に設置した様子。(右) 得られた波形データの一例。

## 4. 研究成果

### (1) 結晶の大型化

#### ① 専用炉を用いた大型 CaI<sub>2</sub>結晶育成とその加工

封じきりのるつぼと専用炉を用いて、直径2インチの大型 CaI<sub>2</sub>結晶の育成に成功した(図3左)。結晶表面が紫色に見えるのは、るつぼ内の水分を除去するために封入した SiCl<sub>4</sub>が水分子と結合して作られた物質であり、表面を除去すれば中は透明であった。図3右は、作製した CaI<sub>2</sub>結晶を業者に加工委託し、2cm×2cm×2mm程度のサイズに切り出し、アルミケース内に封止したものである。大型の結晶育成、そして加工に初めて成功した。

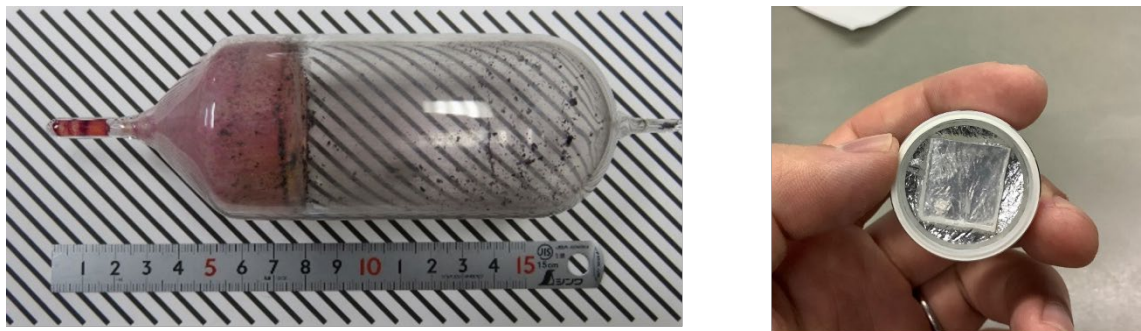


図3: (左) 作製した2インチ CaI<sub>2</sub>結晶。(右) 加工した結晶をケースに封止したもの。

## ② Ca(Br,I)結晶の開発

上記で立ち上げた炉を用いて Eu:Ca(Br<sub>2-x</sub>I<sub>x</sub>)の組成を変えた結晶を何種類か作製した。作った結晶をドライルーム内で小型に切り出し、光電子増倍管と組み合わせて、発光量を NaI(Tl)結晶と比較して求めた。その結果、Eu2%:CaBr<sub>0.5</sub>I<sub>1.5</sub>の組成で 95,400 ph/MeV という大発光量を得た。図4は、横軸が CaBr<sub>2-x</sub>I<sub>x</sub>のXの値、縦軸が発光量である。組成を変えて何種類か試した結果、ヨウ素の割合が多いほど発光量が大きくなり、臭素の割合が多いほど劈開性が弱まり加工しやすいことが判明した。実際に CaBr<sub>0.7</sub>I<sub>1.3</sub>の組成において、2インチ結晶から 5mm 角に加工することに成功した。また、Eu ドープの有無を比較した場合、Br を混ぜたものでは、Eu をドープした方が、発光量が大きくなることも分かった

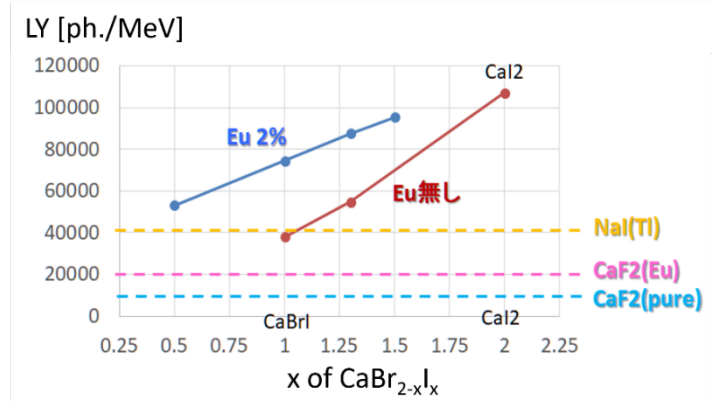


図 4: CaBr<sub>2-x</sub>I<sub>x</sub>のXの値と発光量の関係

## (2) 低バックグラウンド技術の確立

図 5 左に CaI<sub>2</sub> シンチレータにアルファ線と当てた場合と、ガンマ線を当てた場合の波形の違いを示す。それぞれ、1 万事象の平均波形である。波形の最初 200 ns に大きな違いがみられる一方で、波形後半はほとんど変わらないことが分かった。事象ごとの波形の違いを定量化するために、波形前半 200 ns と全体の比を取った Ratio というパラメータを定義した。各事象の Ratio を縦軸に取り、横軸を <sup>137</sup>Cs の 662 keV のガンマ線でキャリブレーションしたエネルギーとした 2 次元プロットを図 5 右に示す。赤がアルファ線、黒がガンマ線のものである。100 keV 以上の領域で、きれいに分布が分かれていることが見て取れる。

次に、潮解性の強い CaI<sub>2</sub> シンチレータにおいて、結晶の表面が潮解した影響を理解する必要があると考えた。実際、湿度 3% 以下のドライルームでも、1 時間ほど置いておけば結晶の表面が白くなってくる。外から線源を照射した場合、dE/dX の大きいアルファ線は結晶の表面で止まってしまうが、ガンマ線は結晶全体で反応が起こる。もし前半 200 ns の波形の違いが潮解した影響によるものであれば、アルファ線でのみその影響が見えている可能性がある。そこで、ドライルーム内で数時間放置してあえて潮解させた CaI<sub>2</sub> にアルファ線を照射して、潮解によって波形が変わるかを確認した。図 5 右の緑色がそれである。赤の潮解していないアルファ線と比べると、Ratio の値はほぼ同じであることが分かった。つまり、潮解によって発光量は減るものの、波形に変化はないということが示され、アルファ線とガンマ線の平均波形の違いは、純粋に粒子種の違いから来ていることが分かった。これにより、CaI<sub>2</sub> の極めて高い波形弁別能が本研究により初めて明らかになった。

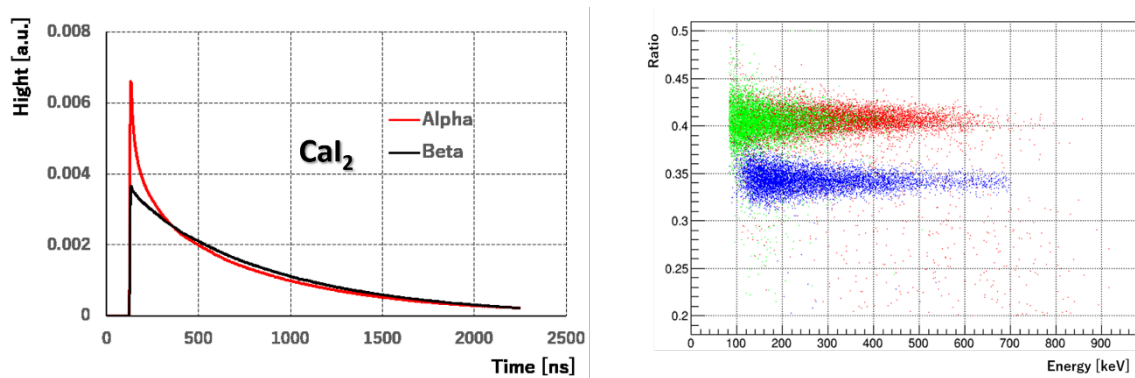


図 5 : (左) CaI<sub>2</sub> で得られた平均波形。赤がアルファ線、黒がガンマ線のデータから得られたもの。(右) 横軸エネルギー、縦軸が Ratio の 2 次元プロット。青がガンマ線、赤がアルファ線である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Takashi Iida, Kei Kamada, Masao Yoshino, Kyoung Jin Kim, Koichi Ichimura, Akira Yoshikawa	4. 巻 958
2. 論文標題 High-light-yield calcium iodide (CaI <sub>2</sub> ) scintillator for astroparticle physics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section	6. 最初と最後の頁 162629
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nima.2019.162629	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Kei Kamada, Takashi Iida, Yuki Furuya et al.	4. 巻 127
2. 論文標題 Crystal growth and scintillation properties of Eu-doped Ca(Br <sub>x</sub> I <sub>1-x</sub> ) <sub>2</sub> crystals	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 106139
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.radmeas.2019.106139	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 K. Mizukoshi, T. Iida, I. Ogawa, K. Shimizu, S. Kurosawa, K. Kamada, M. Yoshino and A. Yoshikawa	4. 巻 14
2. 論文標題 Pulse-shape discrimination potential of new scintillator material: La-GPS:Ce	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Instrumentation	6. 最初と最後の頁 P06037
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1748-0221/14/06/p06037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Takashi Iida, Kei Kamada, Kyoung Jin Kim, Shunsue Kurosawa, Keita Mizukoshi, Izumi Ogawa, Kensei Shimizu, Masao Yoshino, Akira Yoshikawa	4. 巻 1
2. 論文標題 二重ベータ崩壊探索実験のための新規シンチレータ開発 ~ Development of new scintillator for w double beta decay search ~	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of the 33th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses	6. 最初と最後の頁 42-50
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計14件(うち招待講演 2件/うち国際学会 7件)

1. 発表者名 Takashi Iida, Kei Kamada, Masao Yoshino, Kyoung Jin Kim, Akira Yoshikawa
2. 発表標題 20. Development of calcium iodide (CaI <sub>2</sub> ) scintillator for the study of double beta decay of <sup>48</sup> Ca
3. 学会等名 15th International Conference on Scintillating Materials and their Applications (SCINT2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Iida, Kei Kamada, Masao Yoshino, Kyoung Jin Kim, Shunsuke Kurosawa, Akira Yoshikawa,
2. 発表標題 22. R&D of new high-performance scintillators including double beta decay nuclei
3. 学会等名 IEEE NSS-MIC 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯田崇史、鎌田圭、吉野将生、K. J. Kim
2. 発表標題 宇宙史研究のためのCaI <sub>2</sub> シンチレータ開発の現状III ~ 波形弁別能の研究 ~
3. 学会等名 日本物理学会 秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masao Yoshino, Takashi Iida, Kei Kamada, Kyoung Jin Kim, and Akira Yoshikawa
2. 発表標題 Particle identification capability of Ca(Br, I) <sub>2</sub> scintillators for low background experiments
3. 学会等名 Topics in Astroparticle and Underground Physics (TAUP2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯田崇史、吉野将生、水越慧太
2. 発表標題 無機シンチレータを用いた160Gdと96Zrの二重ベータ崩壊の探索
3. 学会等名 Scintillator for Medical, Astroparticle and environmental Radiation Technologies (SMART2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Mizukoshi, T. Iida, I. Ogawa, K. Shimizu, S. Kurosawa, K. Kamada, M. Yoshino and A. Yoshikawa
2. 発表標題 Pulse-shape discrimination potential of Ce:La-GPS and its property in low temperature
3. 学会等名 15th International Conference on Scintillating Materials and their Applications (SCINT2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯田崇史
2. 発表標題 新規シンチレータによるニュートリノ物理
3. 学会等名 Scintillator for Medical, Astroparticle and Environmental Radiation Techniques II (SMART2018) (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 飯田崇史
2. 発表標題 新規高性能シンチレータによる宇宙史研究
3. 学会等名 関西学院大学理工学部講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 飯田崇史、鎌田圭、吉野将生、Kyoung Jin Kim
2. 発表標題 二重ベータ崩壊探索実験のための新規シンチレータ開発
3. 学会等名 第33回「放射線検出器とその応用」研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 飯田崇史、鎌田圭、吉野将生、K. J. Kim
2. 発表標題 宇宙史研究のためのCaI2シンチレータ開発の現状II
3. 学会等名 日本物理学会 秋季大会 信州大学
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takashi Iida, Kei Kamada, Masao Yoshino, Kyoung Jin Kim
2. 発表標題 High light yield calcium iodide (CaI2) detector for astroparticle physics
3. 学会等名 The 15th Vienna Conference on Instrumentation (VCI2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kei Kamada, Takashi Iida, Yuki Furuya, Masao Yoshino, Kyoung Jin Kim, Yasuhiko Shoji, Rikito Murakami, Akihiro Yamaji, Shunsuke Kurosawa, Yuji Ohashi, Yuui Yokota, and Akira Yoshikawa
2. 発表標題 Scintillation properties of undoped and Eu-doped Ca(Br,I)2 single crystals
3. 学会等名 10th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing Radiation (LumDeTr '18) (国際学会)
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 K. Kamada, T. Iida, K. Kim, M. Yoshino, R. Murakami, Y. Furuya, A. Yamaji, S. Kurosawa, Y. Yokota, Y. Ohashi, A. Yoshikawa
2. 発表標題 Crystal growth and scintillation properties of Eu doped Ca(Brx11-x)2
3. 学会等名 2018 IEEE Nuclear science Symposium and Medical Imaging Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋光太郎
2. 発表標題 CaI2シンチレーターの特性測定
3. 学会等名 Scintillator for Medical, Astroparticle and environmental Radiation Technologies (SMART2019)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	小川 泉  (Ogawa Izumi)  (20294142)	福井大学・学術研究院工学系部門・准教授   (13401)	
研究分担者	吉野 将生  (Yoshino Masao)  (30789938)	東北大学・金属材料研究所・助教   (11301)	
研究分担者	鎌田 圭  (Kamada Kei)  (60639649)	東北大学・未来科学技術共同研究センター・准教授   (11301)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	伏見 賢一  (Fushimi Ken-ichi)  (90274191)	徳島大学・理工学研究部・教授    (16101)	
研究協力者	市村 晃一  (Ichimura Koichi)  (80600064)	東京大学・宇宙線研究所・特任助教    (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関