

平成30年6月18日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17700

研究課題名(和文)高発光量ヨウ化物シンチレータによる宇宙暗黒物質探索のための基礎研究

研究課題名(英文)Fundamental research for dark matter search by means of high light yield iodide scintillator

研究代表者

飯田 崇史(IIDA, Takashi)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：40722905

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000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>)を用いて、暗黒物質探索を行うことが可能な新しい高感度シンチレータを開発し、その性能と将来性を評価した。石英封止型ブリッジマン法を用いて、CaI<sub>2</sub>結晶を作成し、NaI(Tl)の2.7倍に当たる107,000光子/MeVという大発光量を達成した。一方で強い劈開性により加工が難しかったため、Iの一部をBrで置き換えたCa(Br,I)<sub>2</sub>シンチレータも作成した。その結果、こちらも95,400光子/MeVとなり、暗黒物質探索に必要な大発光量を達成することに成功した。

研究成果の概要(英文)：This research aims to develop new scintillator using calcium iodide (CaI<sub>2</sub>) and to evaluate the performance of CaI<sub>2</sub> scintillator. We have grown CaI<sub>2</sub> scintillator crystal by BS method and high light yield of 107,000 photon/MeV was achieved. Additionally, we tried Ca(Br,I)<sub>2</sub> crystal growth in order to overcome strong cleavage of CaI<sub>2</sub>. As a result, light yield of Ca(Br,I)<sub>2</sub> was 95,400 photons/MeV and it is high enough for dark matter search experiment.

研究分野：素粒子実験

キーワード：無機シンチレータ 暗黒物質探索 二重ベータ崩壊探索 地下素粒子実験

## 1. 研究開始当初の背景

銀河の回転速度や重力レンズの観測結果から暗黒物質の存在はもはや疑う余地はない。我々の宇宙を構成するエネルギーの27%が未知なる暗黒物質で占められており、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、暗黒物質を知ることは宇宙形成の歴史や現在の宇宙の成り立ちを理解するのに極めて重要である。また暗黒物質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。

イタリアにある DAMA 実験は 250kg の NaI(Tl)シンチレータを用いて  $9\sigma$  の有意性で暗黒物質発見を主張している。だが他の実験からの追認は得られておらず、世界最高感度を誇る液体 Xe を用いた実験は DAMA を一桁以上上回る感度で暗黒物質発見を否定しており、世界各地で大型化・高感度化が進んでいる。中でも NaI(Tl)を用いた実験は DAMA 以外に PICO-LON、DM-Ice、KIMS 等が存在し、世界中で激しい競争となっている。他に CsI(Tl)を用いた実験もあり、無機結晶は暗黒物質探索の主流の一つである。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、大発光量特性を持つヨウ化カルシウム ( $\text{CaI}_2$ ) シンチレータを用いた新しい高感度暗黒物質探索実験を立ち上げることである。ヨウ化カルシウム ( $\text{CaI}_2$ ) 結晶は 1964 年に Hofstadter によって発見されており、NaI の2倍の発光量であることが知られている[1]。しかし、当時の未熟な結晶育成・加工技術のせいで、一般に広まることなく技術が埋没してしまった。本研究では無機シンチレータの育成加工に高い実績を誇る東北大学金属材料研究所の吉川研究室と共同で、同研究室が所有する最新の装置と技術を駆使して  $\text{CaI}_2$  結晶の育成と加工の技術を世界で初めて確立する。

一般的に暗黒物質実験の高感度化には「低閾値、低バックグラウンド (BG)、大型化」の3本の柱が存在する。本研究で用いる  $\text{CaI}_2$  は、暗黒物質実験でよく使われている

NaI(Tl)や液体 Xe と比較して2倍以上の発光量を持つシンチレータで、これにより DAMA 実験の半分(1keV)以下という低閾値が達成可能である。それに加え、本研究で将来に向けた低BG化と大型化のR&Dを行うことで、上記3本柱をすべて達成し世界の暗黒物質実験をリードする画期的な高感度検出器の実現を目指す。

[1] R. Hofstadter, E. W. O'Dell, and S. T. Schmidt, IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-11, 12 (1964)

## 3. 研究の方法

(1)  $\text{CaI}_2$  結晶の育成および評価： 無機結晶の育成では、全国共同利用研究所である東北大学金属材料研究所の装置を使用した。 $\text{CaI}_2$  結晶の作製は、石英封止型ブリッジマン法

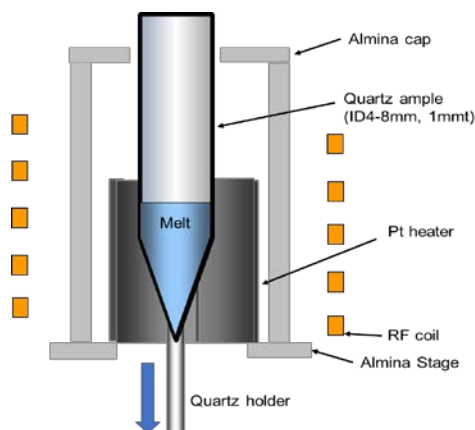


図1:  $\text{CaI}_2$  結晶を作成するのに用いたブリッジマン育成炉の概念図。

(図1)を用いた。各種粉末原料を調合し、9N アルゴン雰囲気下で石英アンブルに投入し、 $300^\circ\text{C}$ でのベーキングの後、石英アンブルを封止した。作製した結晶は、湿度1%以下のドライルーム中での切断、研磨の後、発光、シンチレータ特性評価を行った。

(2)  $\text{Ca}(\text{Br},\text{I})_2$  結晶の検討： また、 $\text{CaI}_2$  結晶は劈開性が極めて強く加工が難しいため、より加工性に優れた結晶組成を検討すべく、 $\text{Ca}(\text{Br},\text{I})_2$ 系の固溶体を作成し、結晶作製、結晶相観察、そしてシンチレータ特性評価を行った。

#### 4. 研究成果

(1) ブリッジマン結晶育成法によりハーフインチおよび1インチサイズの  $\text{CaI}_2$  結晶の育成に成功した(図2)。育成の際、蒸発とクラックが問題となった。蒸発に関してはつぼ封じ切りをして育成するという手法を用いて克服し、クラックも温度勾配など育成時のパラメータを調整することで防ぐことが出来た。

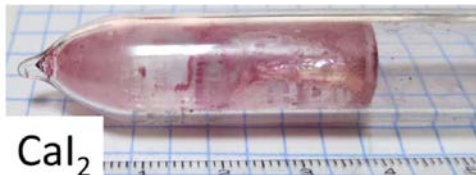


図2：作成したハーフインチ  $\text{CaI}_2$  結晶。紫色に見えるのは脱水剤で用いた  $\text{SiCl}_4$ 。

次に作成した結晶を数 mm 角で小さく切り出し、光電子増倍管と組み合わせて発光量の評価を行ったところ、 $\text{NaI(Tl)}$ と比較して2.7倍の 107,000 ph/MeV という大発光量特性を確認することが出来た。 $^{137}\text{Cs}$  のガンマ線(662keV)を照射した際のスペクトルを図3に示す。また発光波長410nm、励起波長300nmという結果も得られた。期待以上の非常に良い成果を上げることに成功し、この結果を国際ジャーナルに投稿した[発表論文②]。

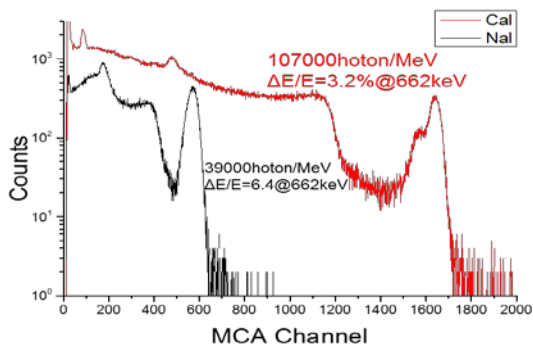


図3： $^{137}\text{Cs}$  のガンマ線を照射した際の、 $\text{CaI}_2$  /  $\text{NaI(Tl)}$  のエネルギースペクトル。

(2) しかしながら、 $\text{CaI}_2$  結晶は劈開性が非常に強く、雲母のように層をなして加工が極めて難しいことが判明した。このため、結晶内のヨウ素 (I) を一部臭素 (Br) で置き換えた結晶を試作し、加工性に優れかつ大発光量



図4：作成した  $\text{Ca(Br,I)}_2$  結晶。Br の割合が異なる3種類を試作した。

である結晶組成を検討した。 $\text{CaI}_2$  同様、石英封止型ブリッジマン法を用いて作製した Eu 添加  $\text{Ca(Br, I)}_2$  結晶を図4に示す。 $\text{Eu2%:CaBr0.5I1.5}$ 、 $\text{Eu2%:CaBrI}$  の組成について透明性を有する結晶が得られた。

次に  $\text{CaI}_2$  結晶と同様に光電子増倍管と組み合わせて、発光量を  $\text{NaI(Tl)}$  結晶と比較して求めた。その結果、こちらも 95,400 ph/MeV という非常に大きい光量を得た。

今後は、得られた結晶の発光量、発光波長、時定数などの特性評価を詳細に調べ、最適な結晶組成を決定する。

また大型化に向けて専用の育成炉を立ち上げ、結晶育成のスピードアップを目指す。それにより結晶の大型化と加工の技術を確立し、今後2年以内に1インチ以上の実用的な結晶を完成させる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計1件）

- ① Kei Kamada, Takashi Iida, Takaki Ohata, Masao Yoshino, Shoki Hayasaka, Yasuhiro Shoji, Shiro Sakuragi, Shunsuke Kurosawa, Yuui Yokota, Yuji Ohashi, Akira Yoshikawa  
“Single crystal growth and scintillation properties of Ca(Cl, Br, I)<sub>2</sub> single crystal”  
Ceramics International, Volume 43, Supplement 1, August 2017, Pages S423-S427 査読有

〔学会発表〕（計8件）

- ① 「(招待講演) CaI<sub>2</sub>シンチレータの開発」  
無機シンチレータ研究会 (SMART 2017)  
蔵王温泉ホテル樹林 2017年11月11日
- ② “Multi-purpose detector using high light yield CaI<sub>2</sub> crystal”  
Takashi Iida, Kei Kamada, Takaki Ohata (ポスター発表)  
XV International Conference on Topics in Astroparticle and Underground Physics (TAUP2017)  
Sudbury, ON, Canada, 2017年7月25日
- ③ Low background double beta decay search in CANDLES  
Takashi Iida for the CANDLES collaboration (口頭発表)  
International Workshop on Double Beta Decay and Underground Science (DBD16)  
Osaka University, Japan, 2016年11月8日
- ④ 「宇宙暗黒物質探索のためのヨウ化カルシウムシンチレータの開発」  
飯田崇史、鎌田圭、太畑貴綺  
日本物理学会 秋季大会 宮崎大学  
2016年9月21日

- ⑤ “Development of Calcium Iodide scintillator for future dark matter search”

Takashi Iida and Kei Kamada (ポスター発表)

Revealing the history of the universe with underground particle and nuclear research 2016

Koshiha Hall, University of Tokyo, 2016年5月11日

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

飯田 崇史 (IIDA, Takashi)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：40722905